



013004

(19) 【発行国】 日本国特許庁 (JP)

(19) [Publication Office] Japanese Patent Office (JP)

(12) 【公報種別】 公開特許公報 (A)

(12) [Kind of Document] Japan Unexamined Patent Publication (A)

(11) 【公開番号】 特開平 11-97180

(11) [Publication Number of Unexamined Application] Japan Unexamined Patent Publication Hei 11-97180

(43) 【公開日】 平成 11 年 (1999) 4 月 9 日

(43) [Publication Date of Unexamined Application] 1999 (1999) April 9 day

(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子

(54) [Title of Invention] ORGANIC ELECTROLUMINESCENT ELEMENT

(51) 【国際特許分類第 6 版】

(51) [International Patent Classification 6th Edition]

H05B 33/14

H05B 33/14

C09K 11/06

C09K 11/06

H05B 33/22

H05B 33/22

【FI】

[FI]

H05B 33/14 B

H05B 33/14 B

C09K 11/06 Z

C09K 11/06 Z

H05B 33/22 B

H05B 33/22 B

D

D

【審査請求】 未請求

[Request for Examination] Examination not requested

【請求項の数】 6

[Number of Claims] 6

【出願形態】 OL

[Form of Application] OL

【全頁数】 19

[Number of Pages in Document] 19

(21) 【出願番号】 特願平 9-258971

(21) [Application Number] Japan Patent Application Hei 9-258971

(22) 【出願日】 平成 9 年 (1997) 9 月 24 日

(22) [Application Date] 1997 (1997) September 24 day

(71) 【出願人】

(71) [Applicant]

【識別番号】 000005887

[Applicant Code] 000005887

【氏名又は名称】 三井化学株式会社

[Name] MITSUI CHEMICALS INC. (DB 69-056-7037)

【住所又は居所】 東京都千代田区霞が関三丁目 2 番 5 号

[Address] Tokyo Chiyoda-ku Kasumigaseki 3-Chome 2-5

(72) 【発明者】

【氏名】西本 泰三

【住所又は居所】神奈川県横浜市栄区笠間町 1 1 9 0 番地  
三井東圧化学株式会社内

(72) 【発明者】

【氏名】三沢 伝美

【住所又は居所】神奈川県横浜市栄区笠間町 1 1 9 0 番地  
三井東圧化学株式会社内

(72) 【発明者】

【氏名】杉本 賢一

【住所又は居所】神奈川県横浜市栄区笠間町 1 1 9 0 番地  
三井東圧化学株式会社内

(72) 【発明者】

【氏名】塚原 宇

【住所又は居所】神奈川県横浜市栄区笠間町 1 1 9 0 番地  
三井東圧化学株式会社内

(72) 【発明者】

【氏名】詫摩 啓輔

【住所又は居所】神奈川県横浜市栄区笠間町 1 1 9 0 番地  
三井東圧化学株式会社内

(72) 【発明者】

【氏名】中塚 正勝

【住所又は居所】神奈川県横浜市栄区笠間町 1 1 9 0 番地  
(57) 【要約】

【解決手段】 一対の電極間に、ベンゾピロメテン系化合物を少なくとも 1 種含有する層を、少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子。

【効果】 発光輝度が優れた有機電界発光素子を提供する。

(72) [Inventor]

[Name] Nishimoto Taizo

[Address] Inside of Kanagawa Prefecture Yokohama City Sakae-ku Kasama-cho 119 0 Mitsui Toatsu Chemicals Inc. (DB 69-053-6982)

(72) [Inventor]

[Name] Misawa transmission beauty

[Address] Inside of Kanagawa Prefecture Yokohama City Sakae-ku Kasama-cho 119 0 Mitsui Toatsu Chemicals Inc. (DB 69-053-6982)

(72) [Inventor]

[Name] Sugimoto Kenichi

[Address] Inside of Kanagawa Prefecture Yokohama City Sakae-ku Kasama-cho 119 0 Mitsui Toatsu Chemicals Inc. (DB 69-053-6982)

(72) [Inventor]

[Name] Tsukahara space/large house

[Address] Inside of Kanagawa Prefecture Yokohama City Sakae-ku Kasama-cho 119 0 Mitsui Toatsu Chemicals Inc. (DB 69-053-6982)

(72) [Inventor]

[Name] Takuma Keisuke

[Address] Inside of Kanagawa Prefecture Yokohama City Sakae-ku Kasama-cho 119 0 Mitsui Toatsu Chemicals Inc. (DB 69-053-6982)

(72) [Inventor]

[Name] Nakatsuka Masakatsu

(57) [Abstract]

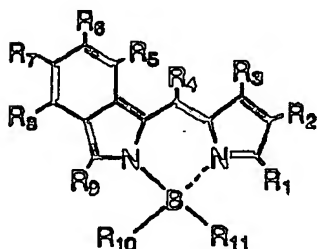
[Means of Solution] Between pair of electrodes, at least one layer clamping doing layer which at least 1 kind contains, the benzo pyro methene compound, organic electroluminescent element which becomes.

[Effect(s)] Organic electroluminescent element where light emission luminance is superior is offered.

## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 一对の電極間に、下記一般式 (1) (化 1) で表される化合物を少なくとも 1 種含有する層を、少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子。

【化 1】



(1)

【式中、R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>、R<sub>7</sub>、R<sub>8</sub>、R<sub>9</sub> はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、アルキル基、ハロゲンアルキル基、アルコキシアルキル基、アルコキシ基、アルコキシアルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、ジアルキルアミノカルボニル基、アルキルカルボニルアミノ基、アリールカルボニルアミノ基、アリールアミノカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アラール基、炭素環式アリール基、複素環式アリール基、アルキルチオ基、アリールチオ基、アルケニルオキシカルボニル基、アラールオキシカルボニル基、アルキルカルボニルアルコキシカルボニル基、ジ(アルコキシアルキル)アミノカルボニル基、またはアルケニル基を表し、R<sub>4</sub> は水素原子、シアノ基、アルキル基、アラール基、炭素環式アリール基、複素環式アリール基、またはアルケニル基を表し、R<sub>10</sub>およびR<sub>11</sub>はフッ素原子、アルキル基、アルコキシ基、アラール基、炭素環式アリール基、または複素環式アリール基を表す】

【請求項 2】 一般式 (1) で表される化合物を含有する層が、発光層である請求項 1 記載の有機電界発光素子。

【請求項 3】 一般式 (1) で表される化合物を含有する層が、電子注入輸送層である請求項 1 記載の有機電界発光素子。

【請求項 4】 一般式 (1) で表される化合物を含有する層

## [Claim(s)]

[Claim 1] Between pair of electrodes, at least one layer clamping doing layer which at least 1 kind contains, the compound which is displayed with below-mentioned General Formula (1) (Chemical formula 1), organic electroluminescent element which becomes.

[Chemical Formula 1]

(The inside of Formula, R<sub>1</sub>, R<sub>2</sub>, R<sub>3</sub>, R<sub>5</sub>, R<sub>6</sub>, R<sub>7</sub>, R<sub>8</sub>, R<sub>9</sub> for R<sub>9</sub> to respective independence, hydrogen atom, halogen atom, cyano group, alkyl group, halogeno alkyl group, alkoxy alkyl group, alkoxy group, alkoxy alkoxy group, aryloxy group, acyl group, alkoxy carbonyl group, dialkyl amino carbonyl group, alkyl carbonyl amino group, aryl carbonyl amino group, aryl amino carbonyl group, aryloxy carbonyl group, aralkyl group, the carbocyclic aryl group, heterocyclic aryl group, alkyl thio group, aryl thio group, alkenyl oxy carbonyl group, aralkyloxy carbonyl group, the alkoxy carbonyl alkoxy carbonyl group, alkyl carbonyl alkoxy carbonyl group, di (alkoxy alkyl) amino carbonyl group or alkenyl group are displayed, R<sub>4</sub> displays hydrogen atom, cyano group, alkyl group, aralkyl group, carbocyclic aryl group, the heterocyclic aryl group or alkenyl group, R<sub>10</sub> and R<sub>11</sub> displays fluorine atom, alkyl group, the alkoxy group, aralkyl group, carbocyclic aryl group or heterocyclic aryl group)

[Claim 2] Layer which contains compound which is displayed with General Formula (1), the organic electroluminescent element which is stated in Claim 1 which is a luminescent layer.

[Claim 3] Layer which contains compound which is displayed with General Formula (1), the organic electroluminescent element which is stated in Claim 1 which is a electron-implemented transport layer.

[Claim 4] Layer which contains compound which is displayed

が、さらに発光性有機金属錯体を含む請求項 1～3 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【請求項 5】 一对の電極間に、さらに、正孔注入輸送層を有する請求項 1～4 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【請求項 6】 一对の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する請求項 1～5 のいずれかに記載の有機電界発光素子。

# 【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、有機電界発光素子に関する。

【0002】

【従来の技術】 従来、無機電界発光素子は、例えば、バックライトなどのパネル型光源として使用されてきたが、該発光素子を駆動させるには、交流の高電圧が必要である。最近になり、発光材料に有機材料を用いた有機電界発光素子（有機エレクトロルミネッセンス素子：有機 EL 素子）が開発された【Appl. Phys. Lett., 51, 913 (1987)】。有機電界発光素子は、蛍光性有機化合物を含む薄膜を、陽極と陰極間に挟持された構造を有し、該薄膜に電子および正孔（ホール）を注入して、再結合させることにより励起子（エキシトン）を生成させ、この励起子が失活する際に放出される光を利用して発光する素子である。有機電界発光素子は、数 V ～数十 V 程度の直流の低電圧で、発光が可能であり、また蛍光性有機化合物の種類を選択することにより、種々の色（例えば、赤色、青色、緑色）の発光が可能である。このような特徴を有する有機電界発光素子は、種々の発光素子、表示素子等への応用が期待されている。しかしながら、一般に、発光輝度が低く、実用上充分ではない。

【0003】 発光輝度を向上させる方法として、発光層として、例えば、トリス（8-キノリノラート）アルミニウムをホスト化合物とし、クマリン誘導体、ピラン誘導体をゲスト化合物（ドーパント）として用いた有機電界発光素子が提案されている【J. Appl. Phys., 65, 3610 (1989)】。また、発光層として、トリス（8-キノリノラート）アルミニ

with General Formula (1), furthermore organic electroluminescent element which is stated in any of Claim 1 to 3 which contains luminescent organometallic complex.

[Claim 5] Between pair of electrodes, furthermore, organic electroluminescent element which is stated in any of Claims 1 through 4 which possesses positive hole injection transport layer.

[Claim 6] Between pair of electrodes, furthermore, organic electroluminescent element which is stated in any of Claims 1 through 5 which possesses electron-implemented transport layer.

# [Description of the Invention]

[0001]

[Technological Field of Invention] This invention regards organic electroluminescent element.

[0002]

[Prior Art] Until recently, inorganic electroluminescent element was used as for example backlight or other panel type light source, but the said luminescent element is driven, high voltage of alternating current is necessary. Recent, organic electroluminescent element (organic electroluminescent element : organic electroluminescent element) which uses organic material for light-emitting material was developed (Applied Physics Letters, 51 and 913 (1987)). organic electroluminescent element, thin film which includes fluorescence organic compound, having structure which the clamping is done between anode and cathode, filling electron and positive hole (hole) in said thin film, forming exciton (エキシトン) by recombination doing, when this exciton inactivation doing, it is a element which light emitting is done making use of light which is discharged. As for organic electroluminescent element, with low voltage of direct current of several V to several tens V extent, light emitting is possible, light emitting of various color (for example red color, blue and green color) is possible by in addition selecting types of fluorescence organic compound. As for organic electroluminescent element which possesses this kind of feature, application to the various luminescent element and display element etc is expected. But, generally, light emitting brightness is low, in regard to utility it is not satisfactory.

[0003] for example tris (8-quinolinolato) aluminum is designated as host compound light emitting brightness as method which improves, as luminescent layer, organic electroluminescent element which uses coumarin derivative and pyran derivative as guest compound (dopant) is proposed (Journal of Applied Physics (0021-8979, JAPIAU), 65, 3610

ウムをホスト化合物とし、ピロメテン誘導体（例えば、1, 3, 5, 7, 8-ペンタメチル-4, 4-ジフルオロ-4-ボラ-3a, 4a-ジアザ-s-インダセン）をゲスト化合物として用いた有機電界発光素子が提案されている（特開平9-118880号公報）。しかしながら、該公報に記載されているピロメテン誘導体を使用すると、発光色は緑ないし黄緑色であり、また充分な発光輝度を有しているとは言い難いことが判明した。さらには、特開平9-118880号公報に記載されているピロメテン誘導体（例えば、1, 3, 5, 7, 8-ペンタメチル-4, 4-ジフルオロ-4-ボラ-3a, 4a-ジアザ-s-インダセン）を含有する層と電極（例えば、陰極）との密着性は乏しく、長期間の使用に際しては、その改良が必要であることが判明した。現在では、橙色ないし赤色に発光し、且つ、高輝度に発光する有機電界発光素子が望まれている。

## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】本発明の課題は、発光効率に優れ、高輝度に発光する有機電界発光素子を提供することである。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】本発明者等は、有機電界発光素子に関して鋭意検討した結果、本発明を完成するに至った。すなわち、本発明は、

一対の電極間に、下記一般式（1）（化2）で表される化合物を少なくとも1種含有する層を、少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子、

一般式（1）で表される化合物を含有する層が、発光層である記載の有機電界発光素子、

一般式（1）で表される化合物を含有する層が、電子注入輸送層である記載の有機電界発光素子、

一般式（1）で表される化合物を含有する層が、さらに発光性有機金属錯体を含有する前記～のいずれかに記載の有機電界発光素子、

(1989)). In addition, tris (8 - quinolinolato) aluminum is designated as host compound as luminescent layer, the organic electroluminescent element which uses pyro methene derivative ( for example 1,3,5,7,8 - pentamethyl - 4, 4-di fluoro - 4 - bora - 3a,4a-di aza - s - indacene ) as guest compound is proposed, ( Japan Unexamined Patent Publication Hei 9 - 118880 disclosure ). But, when pyro methene derivative which is stated in said disclosure is used, emission color was green or yellow green, in addition has possessed satisfactory light emitting brightness with it is difficult saying was ascertained. Furthermore, adhesion of layer and electrode (for example cathode) which contain pyro methene derivative ( for example 1,3,5,7,8 - pentamethyl - 4, 4-di fluoro - 4 - bora - 3a,4a-di aza - s - indacene ) which is stated in Japan Unexamined Patent Publication Hei 9 - 118880 disclosure is scanty, improvement being necessary at time of use of long period, was ascertained. Presently, light emitting it does in amber color or red color, organic electroluminescent element which light emitting is done is desired to and high brightness.

## [0004]

[Problems to be Solved by the Invention] Problem of this invention is superior in light emission efficiency, it is to offer the organic electroluminescent element which light emitting is done in high brightness.

## [0005]

[Means to Solve the Problems] This inventor etc, result of diligent investigation, this invention reached to completion in regard to organic electroluminescent element. As for namely, this invention,

Between pair of electrodes, at least one layer clamping doing 1 layer which at least 1 kind contains, the compound which is displayed with below-mentioned General Formula (1) (Chemical formula 2), organic electroluminescent element which becomes,

Layer which contains compound which is displayed with General Formula (1), is luminescent layer organic electroluminescent element which is stated,

Layer which contains compound which is displayed with General Formula (1), is electron-implanted transport layer organic electroluminescent element which is stated,

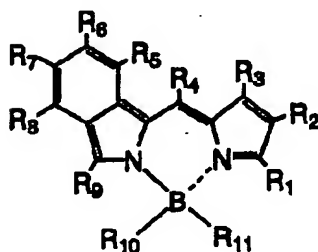
Layer which contains compound which is displayed with General Formula (1), furthermore organic electroluminescent element which is stated in any of the aforementioned to which contains luminescent organometallic complex,

一对の電極間に、さらに、正孔注入輸送層を有する前記～のいずれかに記載の有機電界発光素子、

一对の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する前記～のいずれかに記載の有機電界発光素子、に関するものである。

[0006]

[化2]



(1)

【式中、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_5$ 、 $R_6$ 、 $R_7$ 、 $R_8$ 、 $R_9$ はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、アルキル基、ハロゲンアルキル基、アルコキシアルキル基、アルコキシ基、アルコキシアルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコシカルボニル基、ジアルキルアミノカルボニル基、アルキルカルボニルアミノ基、アリールカルボニルアミノ基、アリールアミノカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アラルキル基、炭素環式アリール基、複素環式アリール基、アルキルチオ基、アリールチオ基、アルケニルオキシカルボニル基、アラルキルオキシカルボニル基、アルコキシカルボニルアルコキシカルボニル基、アルキルカルボニルアルコキシカルボニル基、ジ(アルコキシアルキル)アミノカルボニル基、またはアルケニル基を表し、 $R_4$ は水素原子、シアノ基、アルキル基、アラルキル基、炭素環式アリール基、複素環式アリール基、またはアルケニル基を表し、 $R_{10}$ および $R_{11}$ はフッ素原子、アルキル基、アルコキシ基、アラルキル基、炭素環式アリール基、または複素環式アリール基を表す】

[0007]

【発明の実施の形態】以下、本発明に関して詳細に説明する。本発明の有機電界発光素子は、一对の電極間に、前記一般式(1)で表されるベンゾピロメテン系化合物を少なくとも1種含有する層を、少なくとも一層挟持してなるものである。前記一般式(1)で表されるベンゾピロメテン系化合物において、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_5$ 、 $R_6$ 、 $R_7$ 、 $R_8$ 、 $R_9$ はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、アルキル基、ハロゲンアルキル基、アルコキシアルキル基、アルコキシ基、アルコキシアルコキシ基、アリールオキシ基、

Between pair of electrodes, furthermore, organic electroluminescent element which is stated in any of aforementioned to which possesses positive hole injection transport layer,

Between pair of electrodes, furthermore, organic electroluminescent element which is stated in any of aforementioned to which possesses electron-implanted transport layer, it is something regarding.

[0006]

[Chemical Formula 2]

(The inside of Formula,  $R_1$ ,  $R_2$ ,  $R_3$ ,  $R_5$ ,  $R_6$ ,  $R_7$ ,  $R_8$ ,  $R_9$  for  $R_9$  to respective independence, hydrogen atom, halogen atom, cyano group, alkyl group, halogeno alkyl group, alkoxy alkyl group, alkoxy group, alkoxy alkoxy group, aryloxy group, acyl group, alkoxy carbonyl group, dialkyl amino carbonyl group, alkyl carbonyl amino group, aryl carbonyl amino group, aryl amino carbonyl group, aryloxy carbonyl group, aralkyl group, the carbocyclic aryl group, heterocyclic aryl group, alkyl thio group, aryl thio group, alkenyl oxycarbonyl group, aralkyloxy carbonyl group, the alkoxy carbonyl alkoxy carbonyl group, alkyl carbonyl alkoxy carbonyl group, di (alkoxy alkyl) amino carbonyl group or alkenyl group are displayed,  $R_4$  displays hydrogen atom, cyano group, alkyl group, aralkyl group, carbocyclic aryl group, the heterocyclic aryl group or alkenyl group,  $R_{10}$  and  $R_{11}$  displays fluorine atom, alkyl group, the alkoxy group, aralkyl group, carbocyclic aryl group or heterocyclic aryl group)

[0007]

[Embodiment of Invention] You explain in detail below, in regard to this invention. organic electroluminescent element of this invention, between pair of electrodes, at least one layer clamping doing layer which at least 1 kind contains, benzo pyrromethene compound which is displayed with the aforementioned General Formula (1), is something which becomes. In benzo pyrromethene compound which is displayed with aforementioned General Formula (1) putting,  $R_1$ ,  $R_2$ ,  $R_3$ ,  $R_5$ ,  $R_6$ ,  $R_7$ ,  $R_8$ , As for  $R_9$  to respective independence,

、アシル基、アルコキシカルボニル基、ジアルキルアミノカルボニル基、アルキルカルボニルアミノ基、アリールカルボニルアミノ基、アリールアミノカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アラールキル基、炭素環式アリール基、複素環式アリール基、アルキルチオ基、アリールチオ基、アルケニルオキシカルボニル基、アラールキルオキシカルボニル基、アルコキシカルボニルアルコキシカルボニル基、アルキルカルボニルアルコキシカルボニル基、ジ（アルコキシアルキル）アミノカルボニル基、またはアルケニル基を表し、好ましくは、水素原子、アルキル基、炭素環式アリール基を表す。

【0008】 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_5$ 、 $R_6$ 、 $R_7$ 、 $R_8$  および  $R_9$  の具体例としては、水素原子；フッ素、塩素、臭素、ヨウ素のハロゲン原子；シアノ基；例えば、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、*iso*-プロピル基、*n*-ブチル基、*iso*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*iso*-ペンチル基、2-メチルプロピル基、1-メチルプロピル基、*neo*-ペンチル基、1,2-ジメチルプロピル基、1,1-ジメチルプロピル基、*cyclo*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、4-メチルペンチル基、3-メチルペンチル基、2-メチルペンチル基、1-メチルペンチル基、3,3-ジメチルプロピル基、2,3-ジメチルプロピル基、1,3-ジメチルプロピル基、2,2-ジメチルプロピル基、1,2-ジメチルプロピル基、1,1-ジメチルプロピル基、3-エチルプロピル基、2-エチルプロピル基、1-エチルプロピル基、1,2,2-トリメチルプロピル基、1,1,2-トリメチルプロピル基、1-エチル-2-メチルプロピル基、*cyclo*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、2-メチルヘキシル基、3-メチルヘキシル基、4-メチルヘキシル基、5-メチルヘキシル基、2,4-ジメチルペンチル基、*n*-オクチル基、2-エチルヘキシル基、2,5-ジメチルヘキシル基、2,5,5-トリメチルペンチル基、2,4-ジメチルヘキシル基、2,2,4-トリメチルペンチル基、*n*-ノニル基、3,5,5-トリメチルヘキシル基、*n*-デシル基、4-エチルオクチル基、4-エチル-4,5-ジメチルヘキシル基、*n*-ウンデシル基、*n*-ドデシル基、1,3,5,7-テトラメチルオクチル基、4-ブチルオクチル基、6,6-ジエチルオクチル基、*n*-トリデシル基、6-メチル-4-ブチルオクチル基、*n*-テトラデシル基、*n*-ペンタデシル基、3,5-ジメチルヘプチル基、2,6-ジメチルヘプチル基、2,4-ジメチルヘプチル基、2,2,5,5-テトラメチルヘキシル基、1-*cyclo*-ペンチル-2,2-ジメチルプロピル基、1-*cyclo*-ヘキシル-2,2-ジメチルプロピル基等の直鎖、分岐または環状のアルキル基；

【0009】例えば、クロロメチル基、ジクロロメチル基、フルオロメチル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、ノナフルオロブチル基等のハロゲンアルキル基；例えば、メトキシエチル基、エトキシエチル基、*iso*-プロピルオキシエチル基、3-メトキシブ

hydrogen atom, halogen atom, cyano group, alkyl group, halogeno alkyl group, alkoxy alkyl group, the alkoxy group, alkoxy alkoxy group, aryloxy group, acyl group, alkoxy carbonyl group, dialkyl amino carbonyl group, the alkyl carbonyl amino group, aryl carbonyl amino group, aryl amino carbonyl group, aryloxy carbonyl group, aralkyl group, carbocyclic aryl group, the heterocyclic aryl group, alkyl thio group, aryl thio group, alkenyl oxycarbonyl group, aralkyloxy carbonyl group, alkoxy carbonyl alkoxy carbonyl group, the alkyl carbonyl alkoxy carbonyl group, di (alkoxy alkyl) amino carbonyl group or alkenyl group are displayed, preferably, hydrogen atom, the alkyl group and carbocyclic aryl group are displayed.

[0008] As embodiment of  $R_1$ ,  $R_2$ ,  $R_3$ ,  $R_5$ ,  $R_6$ , the  $R_7$  and  $R_8$  and  $R_9$ , hydrogen atom; halogen atom of fluorine, chlorine, bromine and iodine; cyano group; for example methyl group, ethyl group, *n*-propyl group, *iso*-propyl group, *n*-butyl group, *iso*-butyl group, *s*-butyl group, *t*-butyl group, *n*-pentyl group, *iso*-pentyl group, 2-methyl butyl group, 1-methyl butyl group, *neo*-pentyl group, 1,2-dimethyl propyl group, 1,1-dimethyl propyl group, *cyclo*-pentyl group, *n*-hexyl group, 4-methyl pentyl group, 3-methyl pentyl group, 2-methyl pentyl group, 1-methyl pentyl group, 3,3-dimethylbutyl group, 2,3-dimethylbutyl group, 1,3-dimethylbutyl group, 2,2-dimethylbutyl group, 1,2-dimethylbutyl group, 1,1-dimethylbutyl group, 3-ethyl butyl group, 2-ethyl butyl group, 1-ethyl butyl group, 1,2,2-trimethyl butyl group, 1,1,2-trimethyl butyl group, alkyl group of 1-ethyl-2-methyl propyl group, *cyclo*-hexyl group, *n*-heptyl group, 2-methyl hexyl group, 3-methyl hexyl group, 4-methyl hexyl group, 5-methyl hexyl group, 2,4-dimethyl pentyl group, *n*-octyl group, 2-ethylhexyl group, 2,5-dimethyl hexyl group, 2,5,5-trimethyl pentyl group, 2,4-dimethyl hexyl group, 2,2,4-trimethyl pentyl group, *n*-nonyl group, 3,5,5-trimethyl hexyl group, *n*-decyl group, 4-ethyl octyl group, 4-ethyl-4,5-dimethyl hexyl group, *n*-undecyl group, *n*-dodecyl group, 1,3,5,7-tetramethyl octyl group, 4-butyl octyl group, 6,6-diethyl octyl group, *n*-tridecyl group, 6-methyl-4-butyl octyl group, *n*-tetradecyl group, *n*-pentadecyl group, 3,5-dimethyl heptyl group, 2,6-dimethyl heptyl group, 2,4-dimethyl heptyl group, 2,2,5,5-tetramethyl hexyl group, 1-*cyclo*-pentyl-2,2-dimethyl propyl group or other straight chain and branched or cyclic;

[0009] For example chloromethyl group, dichloro methyl group, fluoromethyl group, trifluoromethyl group, penta fluoromethyl group, pentafluoroethyl group and nonafluorobutyl group or other halogeno alkyl group; for example methoxyethyl group, ethoxyethyl group, *iso*-propyl

ロピル基、2-メトキシブチル基等のアルコキシアルキル基；例えば、メトキシ基、エトキシ基、*n*-プロポキシ基、*iso*-プロポキシ基、*n*-ブトキシ基、*iso*-ブトキシ基、*sec*-ブトキシ基、*t*-ブトキシ基、*n*-ペントキシ基、*iso*-ペントキシ基、*n*-*eo*-ペントキシ基、*n*-ヘキシルオキシ基、*n*-ドデシルオキシ基等のアルコキシ基；例えば、メトキシエトキシ基、エトキシエトキシ基、3-メトキシプロピルオキシ基、3-(*iso*-プロピルオキシ)プロピルオキシ基等のアルコキシアルコキシ基；例えば、フェノキシ基、2-メチルフェノキシ基、4-メチルフェノキシ基、4-*t*-ブチルフェノキシ基、2-メトキシフェノキシ基、4-*iso*-プロピルフェノキシ基等のアリールオキシ基；例えば、ホルミル基、アセチル基、エチルカルボニル基、*n*-プロピルカルボニル基、*iso*-プロピルカルボニル基、*n*-ブチルカルボニル基、*iso*-ブチルカルボニル基、*sec*-ブチルカルボニル基、*t*-ブチルカルボニル基、*n*-ペンチルカルボニル基、*iso*-ペンチルカルボニル基、*neo*-ペンチルカルボニル基、2-メチルブチルカルボニル基、ニトロベンジルカルボニル基等のアシル基；例えば、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、イソプロピルオキシカルボニル基、2,4-ジメチルブチルオキシカルボニル基等のアルコキシカルボニル基；

【0010】例えば、ジメチルアミノカルボニル基、ジエチルアミノカルボニル基、ジ-*n*-プロピルアミノカルボニル基、ジ-*n*-ブチルアミノカルボニル基、*N*-メチル-*N*-シクロヘキシルアミノカルボニル基等のジアルキルアミノカルボニル基；例えば、アセチルアミノ基、エチルカルボニルアミノ基、ブチルカルボニルアミノ基等のアルキルカルボニルアミノ基；例えば、フェニルアミノカルボニル基、4-メチルフェニルアミノカルボニル基、2-メトキシフェニルアミノカルボニル基、4-*n*-プロピルフェニルアミノカルボニル基等のアリールアミノカルボニル基；例えば、フェニルカルボニルアミノ基、4-エチルフェニルカルボニルアミノ基、3-ブチルフェニルカルボニルアミノ基等のアリールカルボニルアミノ基；例えば、フェノキシカルボニル基、2-メチルフェノキシカルボニル基、4-メトキシフェノキシカルボニル基、4-*t*-ブチルフェノキシカルボニル基等のアリールオキシカルボニル基；例えば、ベンジル基、ニトロベンジル基、シアノベンジル基、ヒドロキシベンジル基、メチルベンジル基、ジメチルベンジル基、トリメチルベンジル基、ジクロロベンジル基、メトキシベンジル基、エトキシベンジル基、トリフルオロメチルベンジル基、ナフチルメチル基、ニトロナフチルメチル基、シアノナフチルメチル基、ヒドロキシナフチルメチル基、メチルナフチルメチル基、トリフルオロメチルナフチルメチル基等のアラルキル基；

【0011】例えば、フェニル基、ニトロフェニル基、シアノフェニル基、ヒドロキシフェニル基、メチルフェニル基、ジメチルフェニル基、トリメチルフェニル基、ジクロロフェニル基、メトキシフェニル基、エトキシフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、*N,N*-ジメチルアミノフェニル基、

oxyethyl group, 3-methoxypropyl group, 2-methoxybutyl group or other alkoxy alkyl group; for example methoxy group, ethoxy group, *n*-propoxy group, *iso*-propoxy group, *n*-butoxy group, *iso*-butoxy group, *s*-butoxy group, *t*-butoxy group, *n*-pentoxy group, *iso*-pentoxy group, *neo*-pentoxy group, *n*-hexyloxy group and *n*-dodecyl oxy group or other alkoxy group; for example methoxy ethoxy group, ethoxy ethoxy group, 3-methoxypropyl oxy group and 3-(*iso*-propyl oxy) propyl oxy group or other alkoxy alkoxy group; for example phenoxy group, 2-methyl phenoxy group, 4-methyl phenoxy group, 4-*t*-butyl phenoxy group, 2-methoxy phenoxy group, 4-*iso*-propyl phenoxy group or other aryloxy group; for example formyl group, acetyl group, ethyl carbonyl group, *n*-propyl carbonyl group, *iso*-propyl carbonyl group, *n*-butyl carbonyl group, *iso*-butyl carbonyl group, *s*-butyl carbonyl group, *t*-butyl carbonyl group, *n*-pentyl carbonyl group, *iso*-pentyl carbonyl group, *neo*-pentyl carbonyl group, 2-methyl butyl carbonyl group and nitrobenzyl carbonyl group or other acyl group; for example methoxycarbonyl group, ethoxy carbonyl group, isopropyl oxycarbonyl group and 2,4-dimethylbutyl oxycarbonyl group or other alkoxy carbonyl group;

[0010] For example dimethylamino carbonyl group, diethyl amino carbonyl group, di-*n*-propylamino carbonyl group, di-*n*-butyl amino carbonyl group and *N*-methyl-*N*-cyclohexyl amino carbonyl group or other dialkyl amino carbonyl group; for example acetylamino group, ethyl carbonyl amino group and butyl carbonyl amino group or other alkyl carbonyl amino group; for example phenylamino carbonyl group, 4-methylphenyl amino carbonyl group, 2-methoxyphenyl amino carbonyl group, 4-*n*-propyl phenylamino carbonyl group or other aryl amino carbonyl group; for example phenyl carbonyl amino group, 4-ethyl phenyl carbonyl amino group, 3-*t*-butyl phenyl carbonyl amino group or other aryl carbonyl amino group; for example phenoxy carbonyl group, 2-methyl phenoxy carbonyl group, 4-methoxy phenoxy carbonyl group, 4-*t*-butyl phenoxy carbonyl group or other aryloxy carbonyl group; for example benzyl group, nitrobenzyl group, cyano benzyl group, hydroxy benzyl group, methylbenzyl group, dimethyl benzyl group, trimethyl benzyl group, dichloro benzyl group, methoxy benzyl group, ethoxy benzyl group, trifluoromethyl benzyl group, naphthyl methyl group, nitro naphthyl methyl group, cyano naphthyl methyl group, hydroxy naphthyl methyl group, methyl naphthyl methyl group and trifluoromethyl naphthyl methyl group or other aralkyl group;

[0011] For example phenyl group, nitrophenyl group, cyano phenyl group, hydroxyphenyl group, methyl phenyl group, dimethylphenyl group, trimethyl phenyl group, dichlorophenyl group, methoxyphenyl group, ethoxy phenyl group, trifluoromethyl phenyl group, *N,N*-dimethylamino



ナフチル基、ニトロナフチル基、シアノナフチル基、ヒドロキシナフチル基、メチルナフチル基、トリフルオロメチルナフチル基等の炭素環式アリール基；例えば、ピロリル基、チエニル基、フラニル基、オキサゾイル基、イソオキサゾイル基、オキサジアゾイル基、イミダゾイル基、ベンゾオキサゾイル基、ベンゾチアゾイル基、ベンゾイミダゾイル基、ベンゾフラニル基、インドイル基等の複素環式アリール基；例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、*n*-プロピルチオ基、*iso*-プロピルチオ基、*n*-ブチルチオ基、*iso*-ブチルチオ基、*sec*-ブチルチオ基、*t*-ブチルチオ基、*n*-ペンチルチオ基、*iso*-ペンチルチオ基、2-メチルブチルチオ基、1-メチルブチルチオ基、*neo*-ペンチルチオ基、1,2-ジメチルプロピルチオ基、1,1-ジメチルプロピルチオ基等のアルキルチオ基；例えば、フェニルチオ基、4-メチルフェニルチオ基、2-メトキシフェニルチオ基、4-*t*-ブチルフェニルチオ基等のアリールチオ基；例えば、アリルオキシカルボニル基、2-ブテノキシカルボニル基等のアルケニルオキシカルボニル基；例えば、ベンジルオキシカルボニル基、フェネチルオキシカルボニル基等のアラキルオキシカルボニル基；

【0012】例えば、メトキシカルボニルメトキシカルボニル基、エトキシカルボニルメトキシカルボニル基、*n*-プロポキシカルボニルメトキシカルボニル基、イソボウロポキシカルボニルメトキシカルボニル基等のアルコキシカルボニルアルコキシカルボニル基；例えば、メチルカルボニルメトキシカルボニル基、エチルカルボニルメトキシカルボニル基等のアルキルカルボニルアルコキシカルボニル基；例えば、ジ(メトキシエチル)アミノカルボニル基、ジ(エトキシメチル)アミノカルボニル基、ジ(エトキシエチル)アミノカルボニル基、ジ(プロポキシエチル)アミノカルボニル基等のジ(アルコキシアルキル)アミノカルボニル基；例えば、ビニル基、プロペニル基、1-ブテニル基、*iso*-ブテニル基、1-ペンテニル基、2-ペンテニル基、2-メチル-1-ブテニル基、3-メチル-1-ブテニル基、2-メチル-2-ブテニル基、2,2-ジシアノビニル基、2-シアノ-2-メチルカルボキシルビニル基、2-シアノ-2-メチルスルホンビニル基等のアルケニル基を挙げることができる。

【0013】 $R_4$  は水素原子、シアノ基、アルキル基、アラキル基、炭素環式アリール基、複素環式アリール基、またはアルケニル基を表し、好ましくは、水素原子、アルキル基を表す。 $R_4$  の具体例としては、水素原子；シアノ基；例えば、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、*iso*-プロピル基、*n*-ブチル基、*iso*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*iso*-ペンチル基、2-メチルブチル基、1-メチルブチル基、*neo*-ペンチル基、1,2-ジメチルプロピル基、1,1-ジメチルプロピル基、*cyclo*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、4-メチルペンチル基、3-メチルペンチル基、2-メチルペンチル基、1-メチルペンチル基、3,3-ジメチルブチル基、2,3-ジメチルブチル基、1,3-ジメチルブチル基、2,2-ジメチル

phenyl group, naphthyl group, nitro naphthyl group, cyano naphthyl group, hydroxy naphthyl group, methyl naphthyl group, trifluoromethyl naphthyl group or other carbocyclic aryl group; for example pyrrolyl group, thienyl group, furanyl group and oxazolyl group, isoxazolyl group, oxa diazoyl group, imidazolyl group and benzo oxazolyl group, benzo thiazoyl group, benzo imidazolyl group, benzofuranyl group and indolyl group or other heterocyclic aryl group; for example methylthio group, ethyl thio group, *n*-propyl thio group, *iso*-propyl thio group, *n*-butyl thio group, *iso*-butyl thio group, *s*-butyl thio group, *t*-butyl thio group, *n*-pentyl thio group, *iso*-pentyl thio group, 2-methyl butyl thio group, 1-methyl butyl thio group, *neo*-pentyl thio group, 1,2-dimethyl propyl thio group and 1,1-dimethyl propyl thio group or other alkyl thio group; for example phenylthio group, 4-methylphenyl thio group, 2-methoxyphenyl thio group, 4-*t*-butyl phenylthio group or other aryl thio group; for example allyl oxycarbonyl group and 2-butenoxy carbonyl group or other alkenyl oxycarbonyl group; for example benzyloxycarbonyl group and phenethyl oxycarbonyl group or other aralkyloxy carbonyl group;

[0012] For example methoxycarbonyl methoxycarbonyl group, ethoxy carbonyl methoxycarbonyl group, *n*-propoxy carbonyl methoxycarbonyl group and isobutoxy carbonyl methoxycarbonyl group or other alkoxy carbonyl alkoxy carbonyl group; the for example methyl carbonyl methoxycarbonyl group and ethyl carbonyl methoxycarbonyl group or other alkyl carbonyl alkoxy carbonyl group; for example di(methoxyethyl) amino carbonyl group, di(ethoxymethyl) amino carbonyl group, di(ethoxyethyl) amino carbonyl group and di(propoxyethyl) amino carbonyl group or other di(alkoxy alkyl) amino carbonyl group; the for example vinyl group, propenyl group, 1-butenyl group, *iso*-butenyl group, 1-pentenyl group, 2-pentenyl group, the 2-methyl-1-butenyl group, 3-methyl-1-butenyl group, 2-methyl-2-butenyl group, 2,2-di cyano vinyl group, 2-cyano-2-methyl carboxyl vinyl group and 2-cyano-2-methyl sulfone vinyl group or other alkenyl group can belisted.

[0013]  $R_4$  displays hydrogen atom, cyano group, alkyl group, aralkyl group, the carbocyclic aryl group, heterocyclic aryl group or alkenyl group, displays preferably, hydrogen atom and the alkyl group. As embodiment of  $R_4$ , hydrogen atom; cyano group; for example methyl group, ethyl group, *n*-propyl group, *iso*-propyl group, *n*-butyl group, *iso*-butyl group, *s*-butyl group, *t*-butyl group, *n*-pentyl group, *iso*-pentyl group, 2-methyl butyl group, 1-methyl butyl group, *neo*-pentyl group, 1,2-dimethyl propyl group, 1,1-dimethyl propyl group, *cyclo*-pentyl group, *n*-hexyl group, 4-methyl pentyl group, 3-methyl pentyl group, 2-methyl pentyl group, 1-methyl pentyl group, 3,3-dimethylbutyl

ブチル基、1,2-ジメチルブチル基、1,1-ジメチルブチル基、3-エチルブチル基、2-エチルブチル基、1-エチルブチル基、1,2,2-トリメチルブチル基、1,1,2-トリメチルブチル基、1-エチル-2-メチルプロピル基、cyclo-ヘキシル基、n-ヘブチル基、2-メチルヘキシル基、3-メチルヘキシル基、4-メチルヘキシル基、5-メチルヘキシル基、2,4-ジメチルペンチル基、n-オクチル基、2-エチルヘキシル基、2,5-ジメチルヘキシル基、2,5,5-トリメチルペンチル基、2,4-ジメチルヘキシル基、2,2,4-トリメチルペンチル基、n-ノニル基、3,5,5-トリメチルヘキシル基、n-デシル基、4-エチルオクチル基、4-エチル-4,5-ジメチルヘキシル基、n-ウンデシル基、n-ドデシル基、1,3,5,7-テトラメチルオクチル基、4-ブチルオクチル基、6,6-ジエチルオクチル基、n-トリデシル基、6-メチル-4-ブチルオクチル基、n-テトラデシル基、n-ペンタデシル基、3,5-ジメチルヘブチル基、2,6-ジメチルヘブチル基、2,4-ジメチルヘブチル基、2,2,5,5-テトラメチルヘキシル基、1-cyclo-ペンチル-2,2-ジメチルプロピル基、1-cyclo-ヘキシル-2,2-ジメチルプロピル基等の直鎖、分岐または環状のアルキル基；

【0014】例えば、ベンジル基、ニトロベンジル基、シアノベンジル基、ヒドロキシベンジル基、メチルベンジル基、ジメチルベンジル基、トリメチルベンジル基、ジクロロベンジル基、メトキシベンジル基、エトキシベンジル基、トリフルオロメチルベンジル基、ナフチルメチル基、ニトロナフチルメチル基、シアノナフチルメチル基、ヒドロキシナフチルメチル基、メチルナフチルメチル基、トリフルオロメチルナフチルメチル基等のアラルキル基；例えば、フェニル基、ニトロフェニル基、シアノフェニル基、ヒドロキシフェニル基、メチルフェニル基、ジメチルフェニル基、トリメチルフェニル基、ジクロロフェニル基、メトキシフェニル基、エトキシフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、N,N-ジメチルアミノフェニル基、ナフチル基、ニトロナフチル基、シアノナフチル基、ヒドロキシナフチル基、メチルナフチル基、トリフルオロメチルナフチル基等の炭素環式アリール基；ピロリル基、チエニル基、フラニル基、オキサゾイル基、イソオキサゾイル基、オキサジアゾイル基、イミダゾイル基、ベンゾオキサゾイル基、ベンゾチアゾイル基、ベンゾイミダゾイル基、ベンゾフラニル基、インドイル基等の複素環式アリール基；例えば、ビニル基、プロペニル基、1-ブテニル基、iso-ブテニル基、1-ペンテニル基、2-ペンテニル基、2-メチル-1-ブテニル基、3-メチル-1-ブテニル基、2-メチル-2-ブテニル基、2,2-ジシアノビニル基、2-シアノ-2-メチルカルボキシビニル基、2-シアノ-2-メチルスルホンビニル基等のアルケニル基を挙げることができる。

【0015】R<sub>10</sub>およびR<sub>11</sub>はフッ素原子、アルキル基、アラルキル基、炭素環式アリール基、複素環式アリール基、またはアルコキシ基を表し、好ましくは、フッ素原子を表す。

group, 2, 3- dimethylbutyl group, 1, 3- dimethylbutyl group, 2, 2- dimethylbutyl group, 1, 2- dimethylbutyl group, 1, 1- dimethylbutyl group, 3- ethyl butyl group, 2- ethyl butyl group, 1- ethyl butyl group, 1,2, 2- trimethyl butyl group, 1,1, 2- trimethyl butyl group, alkyl group of 1- ethyl-2- methyl propyl group, cyclo- hexyl group, n- heptyl group, 2- methyl hexyl group, 3- methyl hexyl group, 4- methyl hexyl group, 5- methyl hexyl group, 2, 4- dimethyl pentyl group, n- octyl group, 2- ethylhexyl group, 2,5- dimethyl hexyl group, 2,5,5- trimethyl pentyl group, 2, 4- dimethyl hexyl group, 2,2, 4- trimethyl pentyl group, n- nonyl group, 3,5,5- trimethyl hexyl group, n- decyl group, 4- ethyl octyl group, 4- ethyl-4, 5- dimethyl hexyl group, n- undecyl group, n- dodecyl group, 1,3,5,7- tetramethyl octyl group, 4- butyl octyl group, 6,6- diethyl octyl group, n- tridecyl group, 6- methyl- 4- butyl octyl group, n- tetradecyl group, n- pentadecyl group, 3,5- dimethyl heptyl group, 2,6- dimethyl heptyl group, 2, 4- dimethyl heptyl group, 2,2,5,5- tetramethyl hexyl group, 1- cyclo- pentyl-2, 2- dimethyl propyl group, 1- cyclo- hexyl- 2, 2- dimethyl propyl group or other straight chain and branched or cyclic;

[0014] For example benzyl group, nitrobenzyl group, cyano benzyl group, hydroxy benzyl group, methylbenzyl group, dimethyl benzyl group, trimethyl benzyl group, dichloro benzyl group, methoxy benzyl group, ethoxy benzyl group, trifluoromethyl benzyl group, naphthyl methyl group, nitro naphthyl methyl group, cyano naphthyl methyl group, hydroxy naphthyl methyl group, methyl naphthyl methyl group, trifluoromethyl naphthyl methyl group or other aralkyl group; for example phenyl group, nitrophenyl group, cyanophenyl group, hydroxyphenyl group, methyl phenyl group, dimethylphenyl group, trimethyl phenyl group, dichlorophenyl group, methoxyphenyl group, ethoxy phenyl group, trifluoromethyl phenyl group, N, N- dimethylamino phenyl group, naphthyl group, nitro naphthyl group, cyano naphthyl group, hydroxy naphthyl group, methyl naphthyl group, trifluoromethyl naphthyl group or other carbocyclic aryl group; pyrrolyl group, thienyl group, furanyl group and oxazolyl group, isoxazolyl basis, oxa diazo yl group, imidazolyl group and benzo oxazolyl group, benzo thiazoyl group, benzo imidazolyl group, benzofuranyl group and Indolyl group or other heterocyclic aryl group; for example vinyl group, propenyl group, 1- butenyl group, iso- butenyl group, 1- pentenyl group, 2- pentenyl group, the 2- methyl-1- butenyl group, 3- methyl-1- butenyl group, 2- methyl-2- butenyl group, 2, 2- di cyano vinyl group, 2- cyano-2- methyl carboxyl vinyl group and 2- cyano-2- methyl sulfone vinyl group or other alkenyl group can belisted.

[0015] R<sub>10</sub> and R<sub>11</sub> displays fluorine atom, alkyl group, aralkyl group, carbocyclic aryl group, the heterocyclic aryl group or alkoxy group, displays preferably and fluorine atom. As

R<sub>10</sub>およびR<sub>11</sub>の具体例としては、フッ素原子；例えば、メチル基、エチル基、n-プロピル基、iso-プロピル基、n-ブチル基、iso-ブチル基、sec-ブチル基、t-ブチル基、n-ペンチル基、iso-ペンチル基、2-メチルブチル基、1-メチルブチル基、neo-ペンチル基、1,2-ジメチルプロピル基、1,1-ジメチルプロピル基、cyclo-ペンチル基、n-ヘキシル基、4-メチルペンチル基、3-メチルペンチル基、2-メチルペンチル基、1-メチルペンチル基、3,3-ジメチルブチル基、2,3-ジメチルブチル基、1,3-ジメチルブチル基、2,2-ジメチルブチル基、1,2-ジメチルブチル基、1,1-ジメチルブチル基、3-エチルブチル基、2-エチルブチル基、1-エチルブチル基、1,2,2-トリメチルブチル基、1,1,2-トリメチルブチル基、1-エチル-2-メチルプロピル基、cyclo-ヘキシル基、n-ヘプチル基、2-メチルヘキシル基、3-メチルヘキシル基、4-メチルヘキシル基、5-メチルヘキシル基、2,4-ジメチルペンチル基、n-オクチル基、2-エチルヘキシル基、2,5-ジメチルヘキシル基、2,5,5-トリメチルペンチル基、2,4-ジメチルヘキシル基、2,2,4-トリメチルペンチル基、n-ノニル基、3,5,5-トリメチルヘキシル基、n-デシル基、4-エチルオクチル基、4-エチル-4,5-ジメチルヘキシル基、n-ウンデシル基、n-ドデシル基、1,3,5,7-テトラメチルオクチル基、4-ブチルオクチル基、6,6-ジエチルオクチル基、n-トリデシル基、6-メチル-4-ブチルオクチル基、n-テトラデシル基、n-ペンタデシル基、3,5-ジメチルヘプチル基、2,6-ジメチルヘプチル基、2,4-ジメチルヘプチル基、2,2,5,5-テトラメチルヘキシル基、1-cyclo-ペンチル-2,2-ジメチルプロピル基、1-cyclo-ヘキシル-2,2-ジメチルプロピル基等の直鎖、分岐または環状のアルキル基；

【0016】例えば、メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、iso-プロポキシ基、n-ブトキシ基、iso-ブトキシ基、sec-ブトキシ基、t-ブトキシ基、n-ペントキシ基、iso-ペントキシ基、neo-ペントキシ基、n-ヘキシルオキシ基、n-ドデシルオキシ基等のアルコキシ基；例えば、ベンジル基、ニトロベンジル基、シアノベンジル基、ヒドロキシベンジル基、メチルベンジル基、ジメチルベンジル基、トリメチルベンジル基、ジクロロベンジル基、メトキシベンジル基、エトキシベンジル基、トリフルオロメチルベンジル基、ナフチルメチル基、ニトロナフチルメチル基、シアノナフチルメチル基、ヒドロキシナフチルメチル基、メチルナフチルメチル基、トリフルオロメチルナフチルメチル基等のアラルキル基；例えば、フェニル基、ニトロフェニル基、シアノフェニル基、ヒドロキシフェニル基、メチルフェニル基、ジメチルフェニル基、トリメチルフェニル基、ジクロロフェニル基、メトキシフェニル基、エトキシフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、N,N-ジメチルアミノフェニル基、ナフチル基、ニトロナフチル基、シアノナフチル基、ヒドロキシナフチル基、メチルナフチル基、トリフルオロメチルナフチル基等の炭素環式アリール基；ピロリル基、チエニル基、フラニル基、オキサゾイル基、イソオキサゾイル基、オキサジアゾイル基、イ

embodiment of R<sub>10</sub> and R<sub>11</sub>, fluorine atom; for example methyl group, ethyl group, n-propyl group, iso-propyl group, n-butyl group, iso-butyl group, s-butyl group, t-butyl group, n-pentyl group, iso-pentyl group, 2-methyl butyl group, 1-methyl butyl group, neo-pentyl group, 1,2-dimethyl propyl group, 1,1-dimethyl propyl group, cyclo-pentyl group, n-hexyl group, 4-methyl pentyl group, 3-methyl pentyl group, 2-methyl pentyl group, 1-methyl pentyl group, 3,3-dimethylbutyl group, 2,3-dimethylbutyl group, 1,3-dimethylbutyl group, 2,2-dimethylbutyl group, 1,2-dimethylbutyl group, 1,1-dimethylbutyl group, 3-ethyl-butyl group, 2-ethyl butyl group, 1-ethyl butyl group, 1,2,2-trimethyl butyl group, 1,1,2-trimethyl butyl group, alkyl group of 1-ethyl-2-methyl propyl group, cyclo-hexyl group, n-heptyl group, 2-methyl hexyl group, 3-methyl hexyl group, 4-methyl hexyl group, 5-methyl hexyl group, 2,4-dimethyl pentyl group, n-octyl group, 2-ethylhexyl group, 2,5-dimethyl hexyl group, 2,5,5-trimethyl pentyl group, 2,4-dimethyl hexyl group, 2,2,4-trimethyl pentyl group, n-nonyl group, 3,5,5-trimethyl hexyl group, n-decyl group, 4-ethyl octyl group, 4-ethyl-4,5-dimethyl hexyl group, n-undecyl group, n-dodecyl group, 1,3,5,7-tetramethyl octyl group, 4-butyl octyl group, 6,6-diethyl octyl group, n-tridecyl group, 6-methyl-4-butyl octyl group, n-tetradecyl group, n-pentadecyl group, 3,5-dimethyl heptyl group, 2,6-dimethyl heptyl group, 2,4-dimethyl heptyl group, 2,2,5,5-tetramethyl hexyl group, 1-cyclo-pentyl-2,2-dimethyl propyl group, 1-cyclo-hexyl-2,2-dimethyl propyl group or other straight chain and branched or cyclic;

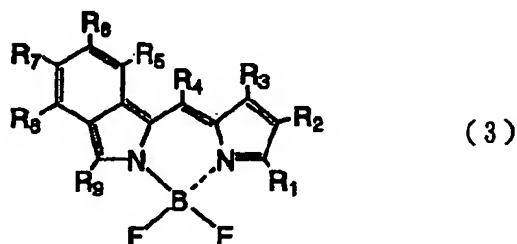
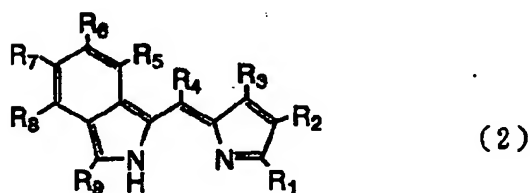
【0016】 For example methoxy group, ethoxy group, n-propoxy group, iso-propoxy group, n-butoxy group, iso-butoxy group, s-butoxy group, t-butoxy group, n-pentoxy group, iso-pentoxy group, neo-pentoxy group, n-hexyloxy group and n-dodecyl oxy group or other alkoxy group; for example benzyl group, nitrobenzyl group, cyano benzyl group, hydroxy benzyl group, methylbenzyl group, dimethyl benzyl group, trimethyl benzyl group, dichloro benzyl group, methoxy benzyl group, ethoxy benzyl group, trifluoromethyl benzyl group, naphthyl methyl group, nitro naphthyl methyl group, cyano naphthyl methyl group, hydroxy naphthyl methyl group, methyl naphthyl methyl group, trifluoromethyl naphthyl methyl group or other aralkyl group; for example phenyl group, nitrophenyl group, cyanophenyl group, the hydroxyphenyl group, methyl phenyl group, dimethylphenyl group, trimethyl phenyl group, dichlorophenyl group, methoxyphenyl group, the ethoxy phenyl group, trifluoromethyl phenyl group, N,N-dimethylamino phenyl group, naphthyl group, nitro naphthyl group, cyano naphthyl group, the hydroxy naphthyl group, methyl naphthyl group, trifluoromethyl

ミダゾイル基、ベンゾオキサゾイル基、ベンゾチアゾイル基、ベンゾイミダゾイル基、ベンゾフラニル基、インドイル基等の複素環式アリール基を挙げることができる。

【0017】本発明の一般式(1)で示されるベンゾピロメテン化合物は、其自体公知の方法に従って製造することができる。例えば、Journal of Chemical Society, Chemical Communications, 1994, 1129-1130に記載の方法に従い製造される一般式(2)(化3)で示される化合物と、三フッ化ホウ素類とを反応させて、一般式(3)(化3)で示される化合物を製造した後、フッ素原子を置換して一般式(1)で示されるベンゾピロメテン化合物を合成する。

【0018】

【化3】



(上式中、R<sub>1</sub>～R<sub>9</sub>は前記に同じ。)本発明に用いられる一般式(1)で示されるベンゾピロメテン化合物の具体例としては、例えば、第1表(表1～3)に示す化合物を挙げることができるが、本発明はこれらの例示化合物に限定されるものではない。

【0019】

naphthyl group or other carbocyclic aryl group; pyrrolyl group, thienyl group, furanyl group and oxazolyl group, isoxazolyl group, oxa diazo yl group, imidazolyl group and benzo oazolyl group, the benzo thiazoyl group, benzo imidazolyl group, benzofuranyl group and India yl group or other heterocyclic aryl group can be listed.

[0017] Following its itself known method, it can produce benzo pyro methene compound which is shown with General Formula (1) of this invention. Reacting with compound and boron trifluoride which are shown with General Formula (2) (Chemical formula 3) which is produced in accordance with method which is stated in the for example Journal of the Chemical Society, Chemical Communications (1359-7345, JCCCAT), 1994, 1129-1130, after producing compound which is shown with general formula (3) (Chemical formula 3), substituting fluorine atom, it synthesizes benzo pyro methene compound which is shown with the General Formula (1).

[0018]

[Chemical Formula 3]






Compound which is shown in for example Table 1 (Table 1 to 3) as embodiment of benzo pyro methene compound which is shown with General Formula (1) which is used for (In above equation, as for R<sub>1</sub> to R<sub>9</sub> same to description above.) this invention, can be listed, but this invention is not something which is limited in these example compound.

[0019]

【表 1】

[Table 1]

第1表

化合物	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	R <sub>5</sub>	R <sub>6</sub>	R <sub>7</sub>	R <sub>8</sub>	R <sub>9</sub>	R <sub>10</sub>	R <sub>11</sub>
1-1	CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	H	F	F
1-2	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	H	F	F
1-3	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	H	F	F
1-4	CH <sub>3</sub>	(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	H	F	F
1-5	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H	H	H	F	F
1-6	CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	t-Bu	t-Bu	H	H	F	F
1-7	CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H	H	H	F	F
1-8		H		H	H	H	H	H	H	F	F
1-9	CH <sub>3</sub>	t-Bu	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	H	F	F
1-10		H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	H	F	F
1-11	CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		H	H	H	H	H	H	F	F
1-12	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>		CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	F	F
1-13	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	H	H	F	F
1-14	H	t-Bu	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	F	F

[0020]

[0020]

【表 2】

[Table 2]

第1表 (つづき)

化合物	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	R <sub>5</sub>	R <sub>6</sub>	R <sub>7</sub>	R <sub>8</sub>	R <sub>9</sub>	R <sub>10</sub>	R <sub>11</sub>
1-15	CO <sub>2</sub> C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	n-C <sub>8</sub> H <sub>17</sub>	CO <sub>2</sub> C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	-S-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> -t-Bu	OCH <sub>3</sub>	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	F
1-16	CH <sub>3</sub>	COOCH <sub>3</sub>		CN	OCH <sub>3</sub>	OCH <sub>3</sub>	OCH <sub>3</sub>	OCH <sub>3</sub>	H		F
1-17	CH <sub>3</sub>	Cl	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	Cl	H	H		n-C <sub>8</sub> H <sub>17</sub>
1-18		H	H	CN	H	H	H	H	H	CO <sub>2</sub> C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> (CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
1-19	Br	CO <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	H		F
1-20	OCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CN	F
1-21		CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	F
1-22	-St-Bu	Cl	Cl	H	H	H	t-Bu	H	H		F
1-23	CH <sub>3</sub>	n-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H		H	H	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	OCH <sub>3</sub>
1-24	CH <sub>3</sub>	O-t-Bu	CH <sub>3</sub>		H	H	H	H	H	CO <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	F
1-25		SO <sub>3</sub> H	H	CN	H	H	t-Bu	H	H		
1-26	CH <sub>3</sub>	CONH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H		H	H		H	H	CO <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> COOCH <sub>3</sub> n-C <sub>8</sub> H <sub>17</sub>	n-C <sub>8</sub> H <sub>17</sub>
1-27	CO <sub>2</sub> C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	NHCOOCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>		(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
1-28	CH <sub>3</sub>	NHCOO-	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	H		F

【0021】

[0021]

第 1 表 (つづき)

化合物	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	R <sub>5</sub>	R <sub>6</sub>	R <sub>7</sub>	R <sub>8</sub>	R <sub>9</sub>	R <sub>10</sub>	R <sub>11</sub>
1-29	CH <sub>3</sub>	O-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>	CH <sub>3</sub>		H	H	H	H		OCH <sub>3</sub>	F
1-30		-S-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> -t-Bu	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	-S-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> -t-Bu	n-C <sub>8</sub> H <sub>17</sub>	n-C <sub>8</sub> H <sub>17</sub>
1-31	CH <sub>3</sub>	OCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	t-Bu		
1-32	CH <sub>3</sub>	CONH-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H			
1-33	CH <sub>2</sub> OCH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	CH=CH <sub>2</sub>	H	H	H	H			
1-34	C <sub>2</sub> F <sub>6</sub>	CON(CH <sub>2</sub> OCH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	CH <sub>3</sub>	CN	H	H	H	H	CH=CH <sub>2</sub>	F	F
1-35	CH <sub>2</sub> OCH <sub>3</sub>	OO <sub>2</sub> -C <sub>6</sub> H <sub>4</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H		F	F
1-36	CH <sub>3</sub>	CH=CH <sub>2</sub>	H	H	H	H	H	H		F	F

【0022】有機電界発光素子は、通常、一対の電極間に、少なくとも1種の発光成分を含有する発光層を、少なくとも一層挟持してなるものである。発光層に使用する化合物の正孔注入および正孔輸送、電子注入および電子輸送の各機能レベルを考慮し、所望に応じて、正孔注入輸送成分を含有する正孔注入輸送層または／および電子注入輸送成分を含有する電子注入輸送層を設けることもできる。例えば、発光層に使

[0022] Organic electroluminescent element, usually, between pair of electrodes, at least one layer clamping doing the luminescent layer which contains light emission component of at least 1 kind, is something which becomes. It considers each functional level of positive hole injection and positive hole transport, the electron injection and electron transport of compound which is used for luminescent layer, it is possible also

用する化合物の正孔注入機能、正孔輸送機能または／および電子注入機能、電子輸送機能が良好な場合には、発光層が正孔注入輸送層または／および電子注入輸送層を兼ねた型の素子の構成とすることができる。勿論、場合によっては、正孔注入輸送層および電子注入輸送層の両方の層を設けない型の素子（一層型の素子）の構成とすることもできる。また、正孔注入輸送層、電子注入輸送層および発光層のそれぞれの層は、一層構造であっても多層構造であってもよく、正孔注入輸送層および電子注入輸送層は、それぞれの層において、注入機能を有する層と輸送機能を有する層を別々に設けて構成することもできる。

【0023】本発明の有機電界発光素子は、一対の電極間に、前記一般式（１）で表される化合物を少なくとも１種含有する層を、少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子である。本発明の有機電界発光素子において、一般式（１）で表される化合物は、正孔注入輸送成分、発光成分または電子注入輸送成分に用いることが好ましく、発光成分または電子注入輸送成分に用いることがより好ましい。本発明の有機電界発光素子においては、一般式（１）で表される化合物は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0024】本発明の有機電界発光素子の構成としては、特に限定するものではなく、例えば、（Ａ）陽極／正孔注入輸送層／発光層／電子注入輸送層／陰極型素子（図１）、（Ｂ）陽極／正孔注入輸送層／発光層／陰極型素子（図２）、（Ｃ）陽極／発光層／電子注入輸送層／陰極型素子（図３）、（Ｄ）陽極／発光層／陰極型素子（図４）などを挙げることができる。さらには、発光層を電子注入輸送層で挟み込んだ型の素子である（Ｅ）陽極／正孔注入輸送層／電子注入輸送層／発光層／電子注入輸送層／陰極型素子（図５）とすることもできる。（Ｄ）型の素子構成としては、発光成分を一層形態で一対の電極間に挟持させた型の素子は勿論であるが、さらには、例えば、（Ｆ）正孔注入輸送成分、発光成分および電子注入輸送成分を混合させた一層形態で一対の電極間に挟持させた型の素子（図６）、（Ｇ）正孔注入輸送成分および発光成分を混合させた一層形態で一対の電極間に挟持させ

to provide electron-implanted transport layer which contains positive hole injection transport layer and/or electron injection transport component which contains positive hole injection transport component according to desire. When positive hole injection function and positive hole transport functional and/or electron injection function of compound which is used for for example luminescent layer, electron transport function is satisfactory, it it can constitute of element of type where luminescent layer combines the positive hole injection transport layer and/or electron-implanted transport layer. Of course, it is possible also to constitute of element (element of single layer type) of the type which does not provide layer of both of positive hole injection transport layer or the electron-implanted transport layer depending upon in case. In addition, respective layer of positive hole injection transport layer, electron-implanted transport layer and the luminescent layer, even when being a construction more, may be multilayer construction, the positive hole injection transport layer and electron-implanted transport layer can also constitute providing layer which possesses injection function in respective layer, and layer which possesses transport function separately.

[0023] Organic electroluminescent element of this invention, between pair of electrodes, at least one layer clamping doing layer which at least 1 kind contains, compound which is displayed with the aforementioned General Formula (1), is organic electroluminescent element which becomes. In organic electroluminescent element of this invention, as for compound which is displayed with the General Formula (1), positive hole injection transport component, it is desirable to use for the light emission component or electron injection transport component, it is more desirable to use for the light emission component or electron injection transport component. Regarding organic electroluminescent element of this invention, it is possible to use compound which is displayed with General Formula (1), with alone, or multiple to jointly use is possible.

[0024] As constitution of organic electroluminescent element of this invention, it is not something which especially is limited, for example (A) anode / positive hole injection transport layer / luminescent layer / electron-implanted transport layer / cathode type element (Figure 1), (B) anode / positive hole injection transport layer / luminescent layer / cathode type element (Figure 2), the (C) anode / luminescent layer / electron-implanted transport layer / cathode type element (Figure 3) and (D) anode / luminescent layer / cathode type element (Figure 4) etc can be listed. Furthermore, it is possible also to make (E) anode / positive hole injection transport layer / electron-implanted transport layer / luminescent layer / electron-implanted transport layer / cathode type element (Figure 5) which is a element of type which inserts luminescent layer with electron-implanted transport layer. As element configuration



た型の素子（図 7）、または（H）発光成分および電子注入輸送成分を混合させた一層形態で一對の電極間に挟持させた型の素子（図 8）がある。

【0025】本発明の有機電界発光素子は、これらの素子構成に限るものではなく、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層を複数層設けたりすることができる。また、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層と発光層との間に、正孔注入輸送成分と発光成分の混合層または／および発光層と電子注入輸送層との間に、発光成分と電子注入輸送成分の混合層を設けることもできる。より好ましい有機電界発光素子の構成は、（A）型素子、（B）型素子、（C）型素子、（E）型素子、（F）型素子、（G）型素子または（H）型素子であり、さらに好ましくは、（A）型素子、（B）型素子、（C）型素子、（F）型素子または（H）型素子である。

【0026】本発明の有機電界発光素子としては、例えば、（図 1）に示す（A）陽極／正孔注入輸送層／発光層／電子注入輸送層／陰極型素子について説明する。（図 1）において、1は基板、2は陽極、3は正孔注入輸送層、4は発光層、5は電子注入輸送層、6は陰極、7は電源を示す。

【0027】本発明の有機電界発光素子は、基板 1 に支持されていることが好ましく、基板としては、特に限定するものではないが、透明ないし半透明であることが好ましく、例えば、ガラス板、透明プラスチックシート（例えば、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリスルホン、ポリメチルメタクリレート、ポリプロピレン、ポリエチレンなどのシート）、半透明プラスチックシート、石英、透明セラミックス、あるいは、これらを組み合わせた複合シートからなるものを挙げることができる。さらに、基板に、例えば、カラーフィルター膜、色変換膜、誘電体反射膜を組み合わせ、発光色

of (D) type, light emission component more with shape element of type which clamping is done of course is between pair of electrodes but, Furthermore, for example (F) positive hole injection transport component, element (Figure 6) of type which with shape which mixes light emission component and the electron injection transport component clamping is done more between pair of electrodes, with (G) positive hole injection transport component and with element (Figure 7), or (H) light emission component of type which shape which mixes light emission component clamping is done more between pair of electrodes and there is a element (Figure 8) of type which the shape which mixes electron injection transport component clamping is done more between pair of electrodes.

[0025] Organic electroluminescent element of this invention is not something which is limited to these element configuration, positive hole injection transport layer, luminescent layer and electron-implanted transport layer multiple layers can be provided in the element of respective type. In addition, with positive hole injection transport layer and luminescent layer, positive hole injection transport component and with of mixed layer and/or luminescent layer and electron-implanted transport layer of light emission component, it is possible also in element of respective type, to provide mixed layer of light emission component and electron injection transport component. Constitution of a more desirable organic electroluminescent element, (A) type element, (B) type element, (C) type element, (E) type element, (F) type element, is the (G) type element or (H) type element, furthermore preferably and (A) type element, (B) type element, (C) type element, is (F) type element or (H) type element.

[0026] As organic electroluminescent element of this invention, you explain concerning (A) anode / positive hole injection transport layer / luminescent layer / electron-implanted transport layer / cathode type element which is shown in for example (Figure 1). In (Figure 1), as for 1 as for substrate and 2 as for the anode and 3 as for positive hole injection transport layer and 4 as for luminescent layer and 5 as for electron-implanted transport layer and 6 as for cathode and the 7 power supply is shown.

[0027] It is not something where as for organic electroluminescent element of this invention, it is desirable, to be supported in substrate 1, especially limits as the substrate. It is desirable, for example glass sheet and transparent plastic sheet (for example polyester, polycarbonate, polysulfone, poly methyl methacrylate, polypropylene and polyethylene or other sheet), semitransparent plastic sheet, quartz and the transparent ceramic, or, to be a transparent or semitransparent, can list those which consist of the composite sheet which combines these. Furthermore, to substrate, is possible also fact

**【0030】**本発明において用いる他の正孔注入輸送機能を有する化合物としては、トリアリールアミン誘導体（例えば、4，4'-ビス〔N-フェニル-N-(4"-メチルフエニル)アミノ〕ビフェニル、4，4'-ビス〔N-フェニル-N-(3"-メチルフエニル)アミノ〕ビフェニル、4，4'-ビス〔N-フェニル-N-(3"-メトキシフェニル)アミノ〕ビフェニル、4，4'-ビス〔N-フェニル-N-(1"-ナフチル)アミノ〕ビフェニル、3，3'-ジメチル-4，4'-ビス〔N-フェニル-N-(3"-メチルフエニル)アミノ〕ビフェニル、1，1'-ビス〔4'-[N-ノジ(4"-メチルフエニル)アミノ]フェニル〕シクロヘキサン、9，10-ビス〔N-(4'-メチルフエニル)

[0030] Regarding to this invention, triaryl amine derivative ( f or example 4, 4'- bis ( N - phenyl - N - ( 4"- methylphenyl ) amino ) biphenyl , 4, 4'- bis ( N - phenyl - N - ( 3"- methylphenyl ) amino ) biphenyl , 4, 4'- bis ( N - phenyl - N - ( 3"- methoxyphenyl ) amino ) biphenyl , 4, 4'- bis ( N - phenyl - N - ( 1"- naphthyl ) amino ) biphenyl , 3, 3'-di methyl - 4, 4'- bis ( N - phenyl - N - ( 3"- methylphenyl ) amino ) biphenyl , 1,1 - bis ( 4' - [N,N-di ( 4"- methylphenyl ) amino ] phenyl ) cyclohexane , 9,10 - bis ( N - ( 4'- methylphenyl ) - N - ( 4"- n-butyl phenyl ) amino ) phenanthrene , 3,8 - bis ( N,N-di phenylamino ) - 6 - phenyl phenanthridine and 4 - methyl - N,N - bis ( 4" , 4"- bis [N' ,

)-N-(4"-n-ブチルフェニル)アミノ]フェナントレン、3,8-ビス(N,N'-ジフェニルアミノ)-6-フェニルフェナントリジン、4-メチル-N,N'-ビス[4"-4'''-ビス(N,N'-ジ(4-メチルフェニル)アミノ)ビフェニル-4-イル]アニリン、N,N'-ビス[4-(ジフェニルアミノ)フェニル]-N,N'-ジフェニル-1,3-ジアミノベンゼン、N,N'-ビス[4-(ジフェニルアミノ)フェニル]-N,N'-ジフェニル-1,4-ジアミノベンゼン、5,5"-ビス[4-(ビス[4-メチルフェニル]アミノ)フェニル]-2,2':5',2"-ターチオフェン、1,3,5-トリス(ジフェニルアミノ)ベンゼン、4,4',4"-トリス(N-カルバゾリル)トリフェニルアミン、4,4',4"-トリス[N-(3'''-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン、1,3,5-トリス[N-(4'-ジフェニルアミノフェニル)フェニルアミノ]ベンゼンなど)、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾール誘導体により好ましい。本発明において、一般式(1)で表される化合物と他の正孔注入輸送機能を有する化合物を併用する場合、正孔注入輸送層中に占める一般式(1)で表される化合物の割合は、好ましくは、0.1~40重量%程度に調製する。]

【0031】発光層4は、正孔および電子の注入機能、それらの輸送機能、正孔と電子の再結合により励起子を生成させる機能を有する化合物を含有する層である。発光層は、一般式(1)で表される化合物および/または他の発光機能を有する蛍光性化合物(例えば、アクリドン誘導体、キナクリドン誘導体、多環芳香族化合物[例えば、ルブレン、アントラセン、テトラセン、ピレン、ペリレン、クリセン、デカシクレン、コロネン、テトラフェニルシクロペンタジエン、ペンタフェニルシクロペンタジエン、9,10-ジフェニルアントラセン、9,10-ビス(フェニルエチニル)アントラセン、1,4-ビス(9'-エチニルアントラセニル)ベンゼン、4,4'-ビス(9"-エチニルアントラセニル)ビフェニル)、トリアリールアミン誘導体[例えば、正孔注入輸送機能を有する化合物として前述した化合物を挙げることができる]、有機金属錯体[例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(10-ベンゾ[h]キノリノラート)ベリリウム、2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾオキサゾールの亜鉛塩、2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾチアゾールの亜鉛塩、4-ヒドロキシアクリジンの亜鉛塩]、スチルベン誘導体[例えば、1,1,4,4-テトラフェニル-1,3-ブタジエン、4,4'-ビス(2,2-ジフェニルビニル)ビフェニル]、クマリン誘導体[例えば、クマリン1、クマリン6、クマリン7、クマリン30、クマリン106、クマリン138、クマリン151、クマリン152、クマリン153、クマリン307、クマリン311、クマリン314、クマリン334、クマリン338、クマリン343、クマリン500]、ピラン誘導体[例えば、DCM1、DCM2]、オキサゾン誘導体[例えば、ナイルレッド]、ベンゾチアゾール誘導体、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ピラジン誘導体、ケイ皮

N'-di(4-methylphenyl)amino]biphenyl-4-yl)aniline, N,N'-bis(4-(diphenylamino)phenyl)-N,N'-di(phenyl-1,3-di amino benzene, N,N'-bis(4-(diphenylamino)phenyl)-N,N'-di(phenyl-1,4-di amino benzene, 5,5"-bis(4-(bis[4-methylphenyl]amino)phenyl)-2,2':5',2"-terthiophene, 1,3,5-tris(diphenylamino)benzene, 4,4',4"-tris(N-carbazolyl)triphenylamine and 4,4',4"-tris(N-(3"-methylphenyl)-N-phenylamino)triphenylamine, such as 1,3,5-tris(N-(4'-di phenylamino phenyl)phenylamino)benzene), polythiophene and its derivative and the poly N-vinyl carbazole derivative are more desirable as compound which possesses other positive hole injection transport function which it uses. Regarding to this invention, when it jointly uses compound which possesses the compound and other positive hole injection transport function which are displayed with General Formula (1), as for ratio of compound which is displayed with General Formula (1) which it occupies in positive hole injection transport layer, it manufactures in preferably and 0.1 to 40 weight % extent.

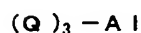
[0031] Luminescent layer 4 is layer which contains compound which possesses the function which forms exciton injection function of positive hole and electron, those transport function, with recombination of positive hole and electron. at least 1 kind using fluorescence compound (for example acridone derivative, quinacridone derivative, polycyclic aromatic compound (for example rubrene, anthracene, tetracene, pyrene, perylene, chrysene, decacyclene, coronene, tetraphenyl cyclopentadiene, pentaphenyl cyclopentadiene, 9,10-di phenyl anthracene, 9,10-bis(phenyl ethynyl)anthracene, 1,4-bis(9'-ethynyl anthracenyl)benzene, 4,4'-bis(9"-ethynyl anthracenyl)biphenyl), triaryl amine derivative (compound which you mention earlier as compound which possesses for example positive hole injection transport function can be listed), organometallic complex (for example tris(8-quinolinolato)aluminum, bis(10-benzo[h]quinolinolato)beryllium, zinc salt of 2-(2'-hydroxyphenyl)benzoxazole, zinc salt of 2-(2'-hydroxyphenyl)benzothiazole, zinc salt of 4-hydroxyacridine), stilbene derivative (for example 1,1,4,4-tetraphenyl-1,3-butadiene, 4,4'-bis(2,2-di phenyl vinyl)biphenyl), coumarin derivative (for example coumarin 1, coumarin 6, coumarin 7, coumarin 30, coumarin 106, coumarin 138, coumarin 151, coumarin 152, coumarin 153, coumarin 307, coumarin 311, coumarin 314, coumarin 334, coumarin 338, coumarin 343 and coumarin 500), such as pyran derivative (for example DCM1 and DCM2), oxazone derivative (for example Nile red), benzothiazole derivative, benzoxazole derivative, benzimidazole derivative, pyrazine derivative, cinnamic acid ester derivative, poly N-vinyl

酸エステル誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾールおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリフェニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリビフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリターフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリナフチレンビニレンおよびその誘導体、ポリチエニレンビニレンおよびその誘導体など)を少なくとも1種用いて形成することができる。

【0032】本発明の有機電界発光素子においては、発光層に一般式(1)で表される化合物を含有していることが好ましい。一般式(1)で表される化合物と他の発光機能を有する化合物を併用する場合、発光層中に占める一般式(1)で表される化合物の割合は、好ましくは、0.001~99.999重量%程度、より好ましくは、0.01~99.99重量%程度、さらに好ましくは、0.1~99.9重量%程度に調製する。

【0033】本発明において用いる他の発光機能を有する化合物としては、発光性有機金属錯体がより好ましい。例えば、J. Appl. Phys., 65, 3610 (1989)、特開平5-214332号公報に記載のように、発光層をホスト化合物とゲスト化合物(ドーパント)とより構成することもできる。一般式(1)で表される化合物を、ホスト化合物として用いて発光層を形成することができ、さらには、ゲスト化合物として用いて発光層を形成することもできる。一般式(1)で表される化合物を、ゲスト化合物として用いて発光層を形成する場合、ホスト化合物としては、発光性有機金属錯体が好ましい。この場合、発光性有機金属錯体に対して、一般式(1)で表される化合物を、好ましくは、0.001~40重量%程度、より好ましくは、0.01~30重量%程度、特に好ましくは、0.1~10重量%程度使用する。

【0034】一般式(1)で表される化合物と併用する発光性有機金属錯体としては、特に限定するものではないが、発光性有機アルミニウム錯体が好ましく、置換または未置換の8-キノリノラート配位子を有する発光性有機アルミニウム錯体がより好ましい。好ましい発光性有機金属錯体としては、例えば、一般式(a)~一般式(c)で表される発光性有機アルミニウム錯体を挙げることができる。



(a)

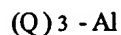
(式中、Qは置換または未置換の8-キノリノラート配位子

carbazole and its derivative, polythiophene and its derivative, polyphenylene and its derivative, poly fluorene and its derivative, polyphenylene vinylene and its derivative, poly biphenylene vinylene and its derivative, poly terphenylene vinylene and its derivative, poly naphthylene vinylene and its derivative, polythienylene vinylene and its derivative) which possesses compound and/or other light emission function which is displayed with General Formula (1) it can form luminescent layer.

[0032] Regarding organic electroluminescent element of this invention, it is desirable to contain compound which in luminescent layer is displayed with General Formula (1). When compound which possesses compound and other light emission function which are displayed with General Formula (1) is jointly used, as for ratio of compound which is displayed with General Formula (1) which is occupied in luminescent layer, the preferably, 0.001 to 99.999 wt% extent, more preferably and 0.01 to 99.99 wt% extent, furthermore it manufactures in preferably and 0.1 to 99.9 wt% extent.

[0033] Regarding to this invention, luminescent organometallic complex is more desirable as compound which possesses other light emission function which it uses. As stated in for example Journal of Applied Physics (0021-8979, JAPIAU), 65, 3610 (1989) and Japan Unexamined Patent Publication Hei 5-214332 disclosure, also to constitute with from the host compound and guest compound (dopant) it is possible luminescent layer. It is possible, furthermore, to form luminescent layer compound which is displayed with General Formula (1), as host compound using, it is possible also to form luminescent layer as guest compound using. When luminescent layer compound which is displayed with General Formula (1), is formed as guest compound using, luminescent organometallic complex is desirable as host compound. In this case, compound which is displayed with General Formula (1) vis-a-vis the luminescent organometallic complex, is used, preferably, 0.001 to 40 wt% extent, more preferably, 0.01 to 30 wt% extent, the particularly preferably and 0.1 to 10 wt% extent.

[0034] It is not something which especially is limited as luminescent organometallic complex which is jointly used with compound which is displayed with General Formula (1). luminescent organoaluminum complex is desirable, luminescent organoaluminum complex which possesses substituted or unsubstituted 8-quinolinolato ligand is more desirable. As desirable luminescent organometallic complex, luminescent organoaluminum complex which is displayed with for example General Formula (a) to General Formula (c) can be listed.



(a)

(In Formula, Q displays substituted or unsubstituted 8-quinolin

を表す) |



(式中、Qは置換8-キノリノラート配位子を表し、O-Lはフェノラート配位子であり、Lはフェニル部分を含む炭素数6~24の炭化水素基を表す)

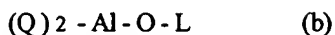


(式中、Qは置換8-キノリノラート配位子を表す)

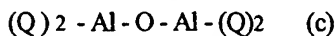
[0035] 発光性有機金属錯体の具体例としては、例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(3,4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4,5-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4,6-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(フェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(4-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3-フェニルフェノラート)アルミニウム、

[0036] ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,3-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,6-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3,4-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3,5-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3,5-ジ-tert-ブチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,6-ジフェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,4,6-トリフェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,4,6-トリメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2,4,5,6-テトラメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(1-ナフトラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-ナフトラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(2-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(3-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2,4-ジメチル-8-キノリノラート)(3,5-ジメチル-

olato ligand. )



(In Formula, Q displays substitution 8 - quinolinolato ligand, O - L is the phenolate ligand, L displays carbon number 6 to 24 hydrocarbon group which includes phenyl portion. )



(In Formula, Q displays substitution 8 - quinolinolato ligand. )

[0035] As embodiment of luminescent organometallic complex, for example tris (8 - quinolinolato) aluminum and tris (4 - methyl - 8 - quinolinolato) aluminum, tris (5 - methyl - 8 - quinolinolato) aluminum, tris (3,4-di methyl - 8 - quinolinolato) aluminum, tris (4,5-di methyl - 8 - quinolinolato) aluminum, tris (4,6-di methyl - 8 - quinolinolato) aluminum, the bis (2 - methyl - 8 - quinolinolato) (phenolate) aluminum, bis (2 - methyl - 8 - quinolinolato) (2 - methyl phenolate) aluminum, bis (2 - methyl - 8 - quinolinolato) (3 - methyl phenolate) aluminum, the bis (2 - methyl - 8 - quinolinolato) (4 - methyl phenolate) aluminum, bis (2 - methyl - 8 - quinolinolato) (2 - phenyl phenolate) aluminum, bis (2 - methyl - 8 - quinolinolato) (3 - phenyl phenolate) aluminum,

[0036] Bis (2 - methyl - 8 - quinolinolato) (4 - phenyl phenolate) aluminum, bis (2 - methyl - 8 - quinolinolato) (2,3-di methyl phenolate) aluminum, bis (2 - methyl - 8 - quinolinolato) (2,6-di methyl phenolate) aluminum, bis (2 - methyl - 8 - quinolinolato) (3,4-di methyl phenolate) aluminum, bis (2 - methyl - 8 - quinolinolato) (3,5-di methyl phenolate) aluminum, bis (2 - methyl - 8 - quinolinolato) (3,5-di - t-butyl phenolate) aluminum, bis (2 - methyl - 8 - quinolinolato) (2,6-di phenyl phenolate) aluminum, bis (2 - methyl - 8 - quinolinolato) (2,4,6-triphenyl phenolate) aluminum, bis (2 - methyl - 8 - quinolinolato) (2,4,6-trimethyl phenolate) aluminum, bis (2 - methyl - 8 - quinolinolato) (2,4,5,6-tetramethyl phenolate) aluminum, bis (2 - methyl - 8 - quinolinolato) (1-naphtholate) aluminum, bis (2 - methyl - 8 - quinolinolato) (2-naphtholate) aluminum, bis (2,4-di methyl - 8 - quinolinolato) (2-phenyl phenolate) aluminum, bis (2,4-di methyl - 8 - quinolinolato) (3-phenyl phenolate) aluminum, bis (2,4-di methyl - 8 - quinolinolato) (4-phenyl phenolate) aluminum, bis (2,4-di methyl - 8 - quinolinolato) (3,5-di methyl phenolate) aluminum, bis (2,4-di methyl - 8 - quinolinolato) (3,5-di - t-butyl phenolate) aluminum,

エノラート) アルミニウム、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラート) (3, 5-ジ-tert-ブチルフェノラート) アルミニウム、

[0037] ビス (2-メチル-8-キノリノラート) アルミニウム-μ-オキソ-ビス (2-メチル-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラート) アルミニウム-μ-オキソ-ビス (2, 4-ジメチル-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート) アルミニウム-μ-オキソ-ビス (2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート) アルミニウム-μ-オキソ-ビス (2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート) アルミニウム-μ-オキソ-ビス (2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート) アルミニウム-μ-オキソ-ビス (2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート) アルミニウムなどを挙げることができる。勿論、発光性有機金属錯体は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

[0038] 電子注入輸送層5は、陰極からの電子の注入を容易にする機能、そして注入された電子を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。電子注入輸送層は、一般式 (1) で表される化合物および/または他の電子注入輸送機能を有する化合物 (例えば、有機金属錯体 [例えば、トリス (8-キノリノラート) アルミニウム、ビス (10-ベンゾ [h] キノリノラート) ベリリウム]、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、トリアジン誘導体、ペリレン誘導体、キノリン誘導体、キノキサリン誘導体、ジフェニルキノン誘導体、ニトロ置換フルオレノン誘導体、チオピランジオキサイド誘導体など) を少なくとも1種用いて形成することができる。本発明の有機電界発光素子においては、電子注入輸送層に、一般式 (1) で表される化合物を含有していることが好ましい。一般式 (1) で表される化合物と他の電子注入輸送機能を有する化合物を併用する場合、電子注入輸送層中に占める本発明に係る一般式 (1) で表される化合物の割合は、好ましくは、0.1重量%以上、より好ましくは、0.1~40重量%程度、さらに好ましくは、0.2~30重量%程度、特に好ましくは、0.5~20重量%程度に調整する。本発明においては、一般式 (1) で表される化合物と有機金属錯体 [例えば、前記一般式 (a) ~一般式 (c) で表される化合物] を併用して、電子注入輸送層を形成することは好ましい。

[0037] Bis (2-methyl-8-quinolinolato) aluminum - oxo-bis (2-methyl-8-quinolinolato) aluminum, bis (2,4-di methyl-8-quinolinolato) aluminum - oxo-bis (2,4-di methyl-8-quinolinolato) aluminum, bis (2-methyl-4-ethyl-8-quinolinolato) aluminum - oxo-bis (2-methyl-4-ethyl-8-quinolinolato) aluminum, bis (2-methyl-4-methoxy-8-quinolinolato) aluminum - oxo-bis (2-methyl-4-methoxy-8-quinolinolato) aluminum, bis (2-methyl-5-cyano-8-quinolinolato) aluminum - oxo-bis (2-methyl-5-cyano-8-quinolinolato) aluminum and bis (2-methyl-5-trifluoromethyl-8-quinolinolato) aluminum - oxo-bis (2-methyl-5-trifluoromethyl-8-quinolinolato) aluminum etc can be listed. Of course, it is possible to use luminescent organometallic complex, with alone, or the plural to jointly use is possible.

[0038] Electron-implanted transport layer 5 makes fill of electron from cathode easy is layer which contains compound which possesses function which transports the electron which functioned, and was filled and. at least 1 kind using compound (Such as for example organometallic complex (for example tris (8-quinolinolato) aluminum and bis (10-benzo [h] quinolinolato) beryllium), oxadiazole derivative, triazole derivative, triazine derivative, perylene derivative, quinoline derivative, quinoxaline derivative, biphenyl quinone derivative, nitro-substituted fluorenone derivative and thiopyran dioxide derivative) which possesses compound and/or other electron-implanted transport function which is displayed with General Formula (1) it can form electron-implanted transport layer. Regarding organic electroluminescent element of this invention, in electron-implanted transport layer, it is desirable to contain compound which is displayed with General Formula (1). When compound which possesses compound and other electron-implanted transport function which are displayed with General Formula (1) is jointly used, as for ratio of compound which is displayed with General Formula (1) which relates to this invention which is occupied in electron-implanted transport layer, preferably, 0.1 weight% or greater, more preferably and 0.1 to 40 wt% extent, furthermore it manufactures in preferably, 0.2 to 30 wt% extent, particularly preferably and the 0.5 to 20 wt% extent. Regarding to this invention, jointly using compound and organometallic complex (compound which with for example aforementioned General Formula (a) to General Formula (c) is displayed) which are displayed with General Formula (1), it is desirable to form electron-implanted transport layer.



【0039】陰極6としては、比較的仕事関数の小さい金属、合金または電気導性化合物を電極物質として使用することが好ましい。陰極に使用する電極物質としては、例えば、リチウム、リチウム-インジウム合金、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、カルシウム、マグネシウム、マグネシウム-銀合金、マグネシウム-インジウム合金、インジウム、ルテニウム、チタニウム、マンガン、イットリウム、アルミニウム、アルミニウム-リチウム合金、アルミニウム-カルシウム合金、アルミニウム-マグネシウム合金、グラファイト薄膜等を挙げることができる。これらの電極物質は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0040】陰極は、これらの電極物質を、例えば、蒸着法、スパッタリング法、イオン化蒸着法、イオンプレーティング法、クラスターイオンビーム法等の方法により、電子注入輸送層の上に形成することができる。また、陰極は一層構造であってもよく、あるいは多層構造であってもよい。尚、陰極のシート電気抵抗は、数百 $\Omega/\square$ 以下に設定するのが好ましい。陰極の厚みは、使用する電極物質の材料にもよるが、一般に、5~1000nm程度、より好ましくは、10~500nm程度に設定する。尚、有機電界発光素子の発光を効率よく取り出すために、陽極または陰極の少なくとも一方の電極が、透明ないし半透明であることが好ましく、一般に、発光光の透過率が70%以上となるように陽極の材料、厚みを設定することがより好ましい。

【0041】また、本発明の有機電界発光素子においては、その少なくとも一層中に、一重項酸素クエンチャーが含有されていてもよい。一重項酸素クエンチャーとしては、特に限定するものではなく、例えば、ルブレン、ニッケル錯体、ジフェニルイソベンゾフランなどが挙げられ、特に好ましくは、ルブレンである。一重項酸素クエンチャーが含有されている層としては、特に限定するものではないが、好ましくは、発光層または正孔注入輸送層であり、より好ましくは、正孔注入輸送層である。尚、例えば、正孔注入輸送層に一重項酸素クエンチャーを含有させる場合、正孔注入輸送層中に均一に含有させてもよく、正孔注入輸送層と隣接する層（例えば、発光層、発光機能を有する電子注入輸送層）の近傍に含有させてもよい。一重項酸素クエンチャーの含有量としては、含有される層（例えば、正孔注入輸送層）を構成する全体量の0.01~50重量%、好ましくは、0.05~30重量%、より好ましくは、0.1~20重量%である。|

[0039] As cathode 6, as electrode substance, it is desirable to use metal, the alloy or electrical conductivity compound where work function is small relatively. for example lithium and lithium-indium alloy, sodium and sodium-potassium alloy, the calcium, magnesium and magnesium-silver alloy, magnesium-indium alloy, the indium, ruthenium, titanium, manganese, yttrium, aluminum and the aluminum-lithium alloy, aluminum-calcium alloy, aluminum-magnesium alloy and graphite thin film etc can be listed as electrode substance which is used for cathode. It is possible to use these electrode substance, with alone, or plural jointly use is possible.

[0040] It can form cathode, on electron-implanted transport layer these electrode substance, with for example vapor deposition method, the sputtering method, ionization vapor deposition method, ion plating method and cluster ion beam method or other method. In addition, cathode may be structure more, or to be multilayer structure is possible. Furthermore as for sheet electrical resistance of cathode, it is desirable to set to several hundred  $\Omega/\text{square}$  or below. thickness of cathode, it depends on also material of electrode substance which is used, but generally, it sets to 5 to 1000 nm extent, more preferably and the 10 to 500 nm extent. Furthermore in order to remove light emission of organic electroluminescent element efficiently, electrode of at least one of anode or cathode, being a transparent or semitransparent is desirable, in order generally, for transmittance of emitted light to become the 70% or higher, material of anode, it is more desirable to set the thickness.

[0041] In addition, in at least one layer, singlet oxygen quencher may be contained regarding the organic electroluminescent element of this invention. As singlet oxygen quencher, it is not something which especially is limited, you can list for example rubrene, nickel complex and biphenyl isobenzofuran etc, it is a particularly preferably and a rubrene. It is not something which especially is limited as layer where the singlet oxygen quencher is contained. It is a preferably, a luminescent layer or a positive hole injection transport layer, is a more preferably and a positive hole injection transport layer. Furthermore when singlet oxygen quencher is contained in for example positive hole injection transport layer, it is impossible to uniform to contain in positive hole injection transport layer, to vicinity of the positive hole injection transport layer and adjacent layers (It possesses for example luminescent layer and light emission function electron-implanted transport layer) to contain is possible. As content of singlet oxygen quencher, 0.01 to 50 wt% of entire amount which forms layer (for example positive hole injection transport layer) which is contained, it is a preferably, a 0.05 to 30 wt%, a more preferably and a 0.1 to 20 wt%.

【0042】正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の形成方法に関しては、特に限定するものではなく、例えば、真空蒸着法、イオン化蒸着法、溶液塗布法（例えば、スピンコート法、キャスト法、ディップコート法、バーコート法、ロールコート法、ラングミュア・プロゼット法など）により薄膜を形成することにより作製することができる。真空蒸着法により、各層を形成する場合、真空蒸着の条件は、特に限定するものではないが、 $10^{-5}$  Torr 程度以下の真空中で、 $50 \sim 400^\circ\text{C}$  程度のボート温度（蒸着源温度）、 $-50 \sim 300^\circ\text{C}$  程度の基板温度で、 $0.005 \sim 50 \text{ nm/sec}$  程度の蒸着速度で実施することが好ましい。この場合、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層は、真空中で、連続して形成することにより、諸特性に一層優れた有機電界発光素子を製造することができる。真空蒸着法により、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を、複数の化合物を用いて形成する場合、化合物を入れた各ボートを個別に温度制御して、共蒸着することが好ましい。

【0043】溶液塗布法により、各層を形成する場合、各層を形成する成分あるいはその成分とバインダー樹脂等を、溶媒に溶解、または分散させて塗布液とする。正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の各層に使用しうるバインダー樹脂としては、例えば、ポリ-N-ビニルカルバゾール、ポリアリレート、ポリスチレン、ポリエステル、ポリシロキサン、ポリメチルアクリレート、ポリメチルメタアクリレート、ポリエーテル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレンオキサイド、ポリエーテルスルホン、ポリアニリンおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリチエニレンビニレンおよびその誘導体等の高分子化合物が挙げられる。バインダー樹脂は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0044】溶液塗布法により、各層を形成する場合、各層を形成する成分あるいはその成分とバインダー樹脂等を、適当な有機溶媒（例えば、ヘキサン、オクタン、デカン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、1-メチルナフタレン等の炭化水素系溶媒、例えば、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン系溶媒、例えば、ジクロロメタン、クロロホルム、テトラクロロメタン、ジクロロエタン、トリクロロエタン、テトラクロロエタン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、クロロトルエン等のハロゲン化炭化水素系溶媒、例えば、酢酸エチル、

[0042] In regard to formation method of positive hole injection transport layer, luminescent layer and electron-implanted transport layer, it is not something which especially is limited, it can produce by forming the thin film with for example vacuum vapor deposition method, ionization vapor deposition method and solution coating method (for example spin coating method, casting method, dip coating method, barcoat method and roll coating method, such as Langmuir-Blodgett method). With vacuum vapor deposition method, when each layer is formed, condition of vacuum vapor deposition is not something which especially is limited. Under vacuum of  $10^{-5}$  Torr extent or less, boat temperature (vapor deposition source temperature) of  $50$  to  $400^\circ\text{C}$  extent, with substrate temperature of  $-50$  to  $300^\circ\text{C}$  extent, it is desirable to execute with vapor deposition rate of  $0.005$  to  $50 \text{ nm/sec}$  extent. In this case, positive hole injection transport layer, luminescent layer and electron-implanted transport layer or other each layer, under the vacuum, continuing, can produce organic electroluminescent element which is superior more in the characteristics by forming. When it forms with vacuum vapor deposition method, positive hole injection transport layer, luminescent layer and electron-implanted transport layer or other each layer, making use of compound of multiple, temperature control doing each boat which inserted compound individually, codeposition it is desirable to do.

[0043] With solution coating method, when each layer is formed, component which forms each layer or component and binder resin etc, melting in solvent, or dispersing it makes coating solution. positive hole injection transport layer, luminescent layer, You can list for example poly N-vinyl carbazole, polyarylate, polystyrene, polyester, polysiloxane, the poly methyl acrylate, poly methyl methacrylate, polyether, polycarbonate, polyamide, polyimide, the polyamideimide, poly paraxylene, polyethylene, polyphenylene oxide, polyether sulfone, polyaniline and its derivative, polythiophene and its derivative, polyphenylene vinylene and its derivative, poly fluorene and its derivative, polythienylene vinylene and its derivative or other polymeric compound as binder resin which it can use for each layer of electron-implanted transport layer. It is possible to use binder resin, with alone, or multiple jointly use is possible.

[0044] With solution coating method, when each layer is formed, component which forms each layer or component and binder resin etc, melting in suitable organic solvent (for example hexane, octane, decane, toluene, xylene, ethyl benzene, 1-methyl naphthalene or other hydrocarbon solvent, for example acetone, methyl ethyl ketone, methyl isobutyl ketone, cyclohexanone or other ketone solvent, for example dichloromethane, chloroform, tetrachloro methane, dichloroethane, trichloroethane, tetrachloroethane, chlorobenzene, dichlorobenzene, chlorotoluene or other



酢酸ブチル、酢酸アミル等のエステル系溶媒、例えば、メタノール、プロパノール、ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、シクロヘキサノール、メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、エチレングリコール等のアルコール系溶媒、例えば、ジブチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、アニソール等のエーテル系溶媒、例えば、N, N-ジメチルホルムアミド、N, N-ジメチルアセトアミド、1-メチル-2-ピロリドン、1, 3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、ジメチルスルフォキシド等の極性溶媒) および/または水に溶解、または分散させて塗布液とし、各種の塗布法により、薄膜を形成することができる。

【0045】尚、分散する方法としては、特に限定するものではないが、例えば、ボールミル、サンドミル、ペイントシェーカー、アトライター、ホモジナイザー等を用いて微粒子状に分散することができる。塗布液の濃度に関しては、特に限定するものではなく、実施する塗布法により、所望の厚みを作製するに適した濃度範囲に設定することができ、一般には、0.1～50重量%程度、好ましくは、1～30重量%程度の溶液濃度である。尚、バインダー樹脂を使用する場合、その使用量に関しては、特に限定するものではないが、一般には、各層を形成する成分に対して（一層型の素子を形成する場合には、各成分の総量に対して）、5～99.9重量%程度、好ましくは、10～99重量%程度、より好ましくは、15～90重量%程度に設定する。

【0046】正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の膜厚に関しては、特に限定するものではないが、一般に、5 nm～5 μm程度に設定することが好ましい。尚、作製した素子に対し、酸素や水分等との接触を防止する目的で、保護層（封止層）を設けたり、また素子を、例えば、パラフィン、流動パラフィン、シリコンオイル、フルオロカーボン油、ゼオライト含有フルオロカーボン油などの不活性物質中に封入して保護することができる。保護層に使用する材料としては、例えば、有機高分子材料（例えば、フッ素化樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、エポキシシリコン樹脂、ポリスチレン、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレンオキサイド）、無機材料（例えば、ダイヤモンド薄膜、アモルファスシリカ、電気絶縁性ガラス、金属酸化物、金属窒化物、金属炭素化合物、金属硫化物）、さらには光硬化性樹脂などを挙げることができ、保護層に使用する材料は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。保護層は、一層構造であってもよく、また多層構造であってもよい。

halogenated hydrocarbon solvent, for example ethyl acetate, butyl acetate, amyl acetate or other ester type solvent, for example methanol, propanol, butanol, pentanol, hexanol, cyclohexanol, methyl cellosolve, ethyl cellosolve, ethyleneglycol or other alcoholic solvent, for example dibutyl ether, tetrahydrofuran, dioxane, anisol or other ether solvent, for example N,N-dimethylformamide, N,N-dimethylacetamide and 1-methyl-2-pyrrolidone, 1,3-dimethyl-2-imidazolidinone, dimethyl sulfoxide or other polar solvent) and/or water, or dispersing it makes coating solution, it can form thin film with the various painting method.

[0045] Furthermore it is not something which especially is limited as the method which is dispersed. It can disperse to fine particulate state making use of for example ball mill, sand mill, the paint shaker, attritor and homogenizer etc. In regard to concentration of coating solution, it is not something which especially is limited, desired thickness is produced it is possible with the painting method which is executed, to set to concentration range which is suited generally, it is a solution concentration of 0.1 to 50 weight% extent, preferably and 1 to 30 weight% extent. Furthermore when binder resin is used, it is not something which especially is limited in regard to amount used. Generally, vis-a-vis component which forms each layer (When element of single layer type is formed, in total weight of each component confronting), it sets to the 5 to 99.9 weight% extent, preferably, 10 to 99 weight% extent, more preferably and 15 to 90 weight% extent.

[0046] In regard to film thickness of positive hole injection transport layer, luminescent layer and electron-implemented transport layer, it is not something which especially is limited. Generally, it is desirable to set to 5 nm to 5 μm extent. Furthermore with objective which prevents contact with the oxygen and moisture etc vis-a-vis element which is produced, the protective layer (stop layer) is provided, in addition element, is enclosed in for example paraffin, the liquid paraffin, silicon oil, fluorocarbon oil and zeolite content fluorocarbon oil or other inactive substance and it can protect. for example organic polymeric material (for example fluorinated resin, epoxy resin, silicone resin, epoxy silicone resin, polystyrene, polyester, polycarbonate, polyamide, polyimide, polyamideimide, polyparaxylene, polyethylene and polyphenylene oxide), inorganic material (for example diamond thin film, amorphous silica, electrically insulating glass, metal oxide, metal nitride, metal carbonized substance and metal sulfide), furthermore it can list photocurable resin etc as the material which is used for protective layer, with alone to use material which is used for protective layer, it is possible, or plural to jointly use is possible. protective layer may be structure more, in addition to be multilayer structure is possible.

【0047】また、電極に保護膜として、例えば、金属酸化膜（例えば、酸化アルミニウム膜）、金属フッ化膜を設けることもできる。また、例えば、陽極の表面に、例えば、有機リン化合物、ポリシラン、芳香族アミン誘導体、フタロシアニン誘導体から成る界面層（中間層）を設けることもできる。さらに、電極、例えば、陽極はその表面を、例えば、酸、アンモニア／過酸化水素、あるいはプラズマで処理して使用することもできる。

【0048】本発明の有機電界発光素子は、一般に、直流駆動型の素子として使用されるが、パルス駆動型または交流駆動型の素子としても使用することができる。尚、印加電圧は、一般に、2～30V程度である。本発明の有機電界発光素子は、例えば、パネル型光源、各種の発光素子、各種の表示素子、各種の標識、各種のセンサーなどに使用することができる。

【0049】

【実施例】以下、実施例により本発明をさらに詳細に説明するが、勿論、本発明はこれらに限定されるものではない。

#### 実施例 1

厚さ200nmのITO透明電極（陽極）を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV／オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torr に減圧した。まず、ITO透明電極上に、4, 4'-ビス〔N-フェニル-N-(1"-ナフチル)アミノ〕ビフェニルを、蒸着速度0.2nm/secで75nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、トリス（8-キノリノラート）アルミニウムと第1表に示す化合物（1-1）（以下、同じ）を、異なる蒸着源から、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに共蒸着（重量比100:0.5）し、発光層とした。次に、トリス（8-キノリノラート）アルミニウムを、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着（重量比10:1）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したところ、 $58\text{mA}/\text{cm}^2$ の電流が流れた。輝度 $2240\text{cd}/\text{m}^2$ の赤橙色の発光が確認された。

[0047] In addition, is possible also fact that for example oxidized metal film (for example aluminum oxide film) and metal fluoride film are provided as protective film, to electrode. In addition, to surface of for example anode, is possible also fact that the interfacial layer (intermediate layer) which consists of for example organophosphorus compound, poly silane, aromatic amine derivative and the phthalocyanine derivative is provided. Furthermore, electrode and for example anode can also use treating surface, with for example acid, ammonia / hydrogen peroxide or plasma.

[0048] It is used as for organic electroluminescent element of this invention, generally, as element of direct current drive type, but as element of pulse drive type or alternating current drive type you can use. Furthermore applied voltage, generally, is 2 to 30V extent. for example panel type light source, various luminescent element, various display element, you can use organic electroluminescent element of this invention, for various label and various sensor etc.

[0049]

[Working Example(s)] This invention furthermore is explained in detail below, with Working Example, but it is not something where of course, this invention is limited in these.

#### Working Example 1

Ultrasonic cleaning it did glass substrate which possesses ITO transparent electrode (anode) of thickness 200 nm, making use of neutral detergent, acetone and ethanol. substrate was dried making use of nitrogen gas, furthermore UV/ ozone after washing, after locking in substrate holder of vapor deposition equipment, vapor deposition tank the vacuum was done in  $3 \times 10^{-6}$  Torr. First, on ITO transparent electrode, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it did 4, 4'-bis (N-phenyl-N-(1"-naphthyl) amino) biphenyl, in thickness of 75 nm, made positive hole injection transport layer. Next, on that, from vapor deposition source which differs, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec codeposition (weight ratio 100:0.5) it did compound (1-1) (Below, same) which is shown in tris (8-quinolinolato) aluminum and Table 1, in the thickness of 50 nm, made luminescent layer. Next, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it did tris (8-quinolinolato) aluminum, in thickness of the 50 nm, made electron-implanted transport layer. Furthermore on that, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec codeposition (weight ratio 10:1) doing magnesium and the silver in thickness of 200 nm, it made cathode, produced the organic electroluminescent element. Furthermore vapor deposition executed while vacuum state of vapor deposition tank was maintained. In organic electroluminescent element which it produces, under dry atmosphere, when imparting it does direct current voltage of

## 【0050】実施例2～14

実施例1において、発光層の形成に際して、化合物(1-1)を使用する代わりに、化合物(1-2～1-14)を使用した以外は、実施例1に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。それぞれの素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したところ、赤橙色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第2表(表4)に示した。

## 【0051】比較例1

実施例1において、発光層の形成に際して、化合物(1-1)を使用せずに、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムだけを用いて、50nmの厚さに蒸着し、発光層とした以外は、実施例1に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。この素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したところ、緑色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第2表に示した。

## 【0052】比較例2

実施例1において、発光層の形成に際して、化合物(1-1)を使用する代わりに、1,3,5,7,8-ペンタメチル-4,4-ジフルオロ-4-ボラ-3a,4a-ジアザ-s-インダセンを使用した以外は、実施例1に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。この素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したところ、緑色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第2表に示した。

## 【0053】

12V, current of 58 mA/cm<sup>2</sup> flowed. light emitting of reddish amber of brightness 2240 cd/m<sup>2</sup> was verified.

## [0050] Working Example 2 to 14

In Working Example 1, at time of formation of luminescent layer, other than using compound (1-2 to 1-14) for substituting which uses compound (1-1), organic electroluminescent element was produced with method which is stated in Working Example 1. In respective element, under dry atmosphere, when imparting it does the direct current voltage of 12V, light emitting of reddish amber was verified. Furthermore characteristic was inspected, result was shown in the Table 2 (Table 4).

## [0051] Comparative Example 1

In Working Example 1, at time of formation of luminescent layer, without using the compound (1-1), vapor deposition it did in thickness of 50 nm making use of just tris (8-quinolinolato) aluminum, other than making luminescent layer, it produced organic electroluminescent element with method which is stated in Working Example 1. In this element, under dry atmosphere, when imparting it does direct current voltage of the 12V, light emitting of green color was verified. Furthermore characteristic was inspected, result was shown in the Table 2.

## [0052] Comparative Example 2

In Working Example 1, at time of formation of luminescent layer, other than using 1,3,5,7,8-pentamethyl-4,4-di fluoro-4-bora-3a,4a-di aza-s-indacene for the substituting which uses compound (1-1), organic electroluminescent element was produced with the method which is stated in Working Example 1. In this element, under dry atmosphere, when imparting it does direct current voltage of the 12V, light emitting of green color was verified. Furthermore characteristic was inspected, result was shown in the Table 2.

## [0053]

【表 4】

[Table 4]

第2表

有機電界 発光素子	輝度 ( $\text{cd}/\text{m}^2$ )	電流密度 ( $\text{mA}/\text{cm}^2$ )
実施例 2	2 2 6 0	6 0
実施例 3	2 2 4 0	5 4
実施例 4	2 2 3 0	6 1
実施例 5	2 2 6 0	5 6
実施例 6	2 3 2 0	5 7
実施例 7	2 2 5 0	5 5
実施例 8	2 3 0 0	5 6
実施例 9	2 2 3 0	5 9
実施例 10	2 2 9 0	5 5
実施例 11	2 3 5 0	5 5
実施例 12	2 3 0 0	5 6
実施例 13	2 2 6 0	6 0
実施例 14	2 3 2 0	6 1
比較例 1	1 1 7 0	8 2
比較例 2	1 5 5 0	6 0

## 【0054】実施例 15

厚さ 200 nm の ITO 透明電極（陽極）を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらに UV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を  $3 \times 10^{-6}$  Torr に減圧した。まず、ITO 透明電極上に、4, 4'-ビス [N-フェニル-N-(3'-メチルフェニル) アミノ] ビフェニルを、蒸着速度 0.2 nm/sec で 75 nm の厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、トリス (8-キノリノラート) アルミニウムと化合物 (1-23) を、異なる蒸着源から、蒸着速度 0.2 nm/sec で 50 nm の厚さに共蒸着（重量比 100:1）し、発光層とした。次に、トリス (8-キノリノラート) アルミニウムを、蒸着速度 0.2 nm/sec で 50 nm の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度 0.2 nm/sec で 200 nm の厚さに共蒸着（重量比 10:1）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、12 V の直流電圧を印加したところ、 $5.8 \text{ mA}/\text{cm}^2$  の電流が流れた。輝度  $1950 \text{ cd}/\text{m}^2$  の赤橙色の発光が確認された。

## [0054] Working Example 15

Ultrasonic cleaning it did glass substrate which possesses ITO transparent electrode (anode) of thickness 200 nm, making use of neutral detergent, acetone and ethanol. substrate was dried making use of nitrogen gas, furthermore UV/ ozone after washing, after locking in substrate holder of vapor deposition equipment, vapor deposition tank the vacuum was done in  $3 \times 10^{-6}$  Torr. First, on ITO transparent electrode, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it did 4, 4'-bis (N-phenyl-N-(3'-methylphenyl) amino) biphenyl, in thickness of 75 nm, made positive hole injection transport layer. Next, on that, from vapor deposition source which differs, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec codeposition (weight ratio 100:1) it did tris (8-quinolinolato) aluminum and compound (1-23), in thickness of 50 nm, made the luminescent layer. Next, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it did tris (8-quinolinolato) aluminum, in thickness of the 50 nm, made electron-implemented transport layer. Furthermore on that, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec codeposition (weight ratio 10:1) doing magnesium and the silver in thickness of 200 nm, it made cathode, produced the organic electroluminescent element. Furthermore vapor deposition executed while vacuum state of vapor

## 【0055】実施例16

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torr に減圧した。まず、ITO透明電極に、4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ]ビフェニルを、蒸着速度0.2nm/secで75nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソ-ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウムと化合物(1-27)を、異なる蒸着源から、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに共蒸着(重量比100:2.0)し、発光層とした。次に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したところ、60mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れた。輝度2010cd/m<sup>2</sup>の赤橙色の発光が確認された。

## 【0056】実施例17

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torr に減圧した。まず、ITO透明電極上に、4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ]ビフェニルを、蒸着速度0.2nm/secで75nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソ-ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウムと化合物(1-16)を、異なる蒸着源から、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに共蒸着(重量比100:4.0)し、発光層とした。次に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸

deposition tank was maintained. In organic electroluminescent element which it produces, under dry atmosphere, when imparting it does direct current voltage of 12V, current of 58 mA/cm<sup>2</sup> flowed. light emitting of reddish amber of brightness 1950 cd/m<sup>2</sup> was verified.

## [0055] Working Example 16

Ultrasonic cleaning it did glass substrate which possesses ITO transparent electrode (anode) of thickness 200 nm, making use of neutral detergent, acetone and ethanol. substrate was dried making use of nitrogen gas, furthermore UV/ ozone after washing, after locking in substrate holder of vapor deposition equipment, vapor deposition tank the vacuum was done in  $3 \times 10^{-6}$  Torr. First, in ITO transparent electrode, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it did 4, 4'-bis (N-phenyl-N-(3"-methylphenyl) amino) biphenyl, in thickness of 75 nm, made positive hole injection transport layer. Next, on that, from vapor deposition source which differs, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec codeposition (weight ratio 100:2.0) it did bis (2-methyl-8-quinolinolato) aluminum- -oxo-bis (2-methyl-8-quinolinolato) aluminum and compound (1-27), in the thickness of 50 nm, made luminescent layer. Next, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it did tris (8-quinolinolato) aluminum, in thickness of the 50 nm, made electron-implanted transport layer. Furthermore on that, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec codeposition (weight ratio 10:1) doing magnesium and the silver in thickness of 200 nm, it made cathode, produced the organic electroluminescent element. Furthermore vapor deposition executed while vacuum state of vapor deposition tank was maintained. In organic electroluminescent element which it produces, under dry atmosphere, when imparting it does direct current voltage of 12V, current of 60 mA/cm<sup>2</sup> flowed. light emitting of reddish amber of brightness 2010 cd/m<sup>2</sup> was verified.

## [0056] Working Example 17

Ultrasonic cleaning it did glass substrate which possesses ITO transparent electrode (anode) of thickness 200 nm, making use of neutral detergent, acetone and ethanol. substrate was dried making use of nitrogen gas, furthermore UV/ ozone after washing, after locking in substrate holder of vapor deposition equipment, vapor deposition tank the vacuum was done in  $3 \times 10^{-6}$  Torr. First, on ITO transparent electrode, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it did 4, 4'-bis (N-phenyl-N-(3"-methylphenyl) amino) biphenyl, in thickness of 75 nm, made positive hole injection transport layer. Next, on that, from vapor deposition source which differs, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec codeposition (weight ratio 100:4.0) it did bis (2,4-di methyl-8-quinolinolato) aluminum- -oxo-bis (2,4-di methyl

着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $50 \text{ nm}$  の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $200 \text{ nm}$  の厚さに共蒸着（重量比  $10:1$ ）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、 $12 \text{ V}$  の直流電圧を印加したところ、 $61 \text{ mA/cm}^2$  の電流が流れた。輝度  $1970 \text{ cd/m}^2$  の赤橙色の発光が確認された。

#### 【0057】実施例18

厚さ  $200 \text{ nm}$  のITO透明電極（陽極）を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を  $3 \times 10^{-6} \text{ Torr}$  に減圧した。まず、ITO透明電極上に、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(3'-メチルフェニル)アミノ]ビフェニルを、蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $75 \text{ nm}$  の厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムと化合物(1-29)を、異なる蒸着源から、蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $50 \text{ nm}$  の厚さに共蒸着（重量比  $100:1$ ）し、電子注入輸送層を兼ねた発光層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $200 \text{ nm}$  の厚さに共蒸着（重量比  $10:1$ ）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、 $12 \text{ V}$  の直流電圧を印加したところ、 $58 \text{ mA/cm}^2$  の電流が流れた。輝度  $1950 \text{ cd/m}^2$  の赤橙色の発光が確認された。

#### 【0058】実施例19

厚さ  $200 \text{ nm}$  のITO透明電極（陽極）を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を  $3 \times 10^{-6} \text{ Torr}$  に減圧した。まず、ITO透明電極上に、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(3'-メチルフェニル)アミノ]ビフェニルを、蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $75 \text{ nm}$  の厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムと化合物(1-29)を、異なる蒸着源から、蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $50 \text{ nm}$  の厚さに共蒸着（重量比  $100:1$ ）し、電子注入輸送層を兼ねた発光層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $200 \text{ nm}$  の厚さに共蒸着（重量比  $10:1$ ）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、 $12 \text{ V}$  の直流電圧を印加したところ、 $58 \text{ mA/cm}^2$  の電流が流れた。輝度  $1950 \text{ cd/m}^2$  の赤橙色の発光が確認された。

- 8 - quinolinolato) aluminum and compound (1 - 16), in the thickness of  $50 \text{ nm}$ , made luminescent layer. Next, with vapor deposition rate  $0.2 \text{ nm/sec}$  vapor deposition it did tris (8 - quinolinolato) aluminum, in thickness of the  $50 \text{ nm}$ , made electron-implanted transport layer. Furthermore on that, with vapor deposition rate  $0.2 \text{ nm/sec}$  codeposition (weight ratio  $10:1$ ) doing magnesium and the silver in thickness of  $200 \text{ nm}$ , it made cathode, produced the organic electroluminescent element. Furthermore vapor deposition executed while vacuum state of vapor deposition tank was maintained. In organic electroluminescent element which it produces, under dry atmosphere, when imparting it does direct current voltage of  $12 \text{ V}$ , current of  $61 \text{ mA/cm}^2$  flowed. light emitting of reddish amber of brightness  $1970 \text{ cd/m}^2$  was verified.

#### [0057] Working Example 18

Ultrasonic cleaning it did glass substrate which possesses ITO transparent electrode (anode) of thickness  $200 \text{ nm}$ , making use of neutral detergent, acetone and ethanol. substrate was dried making use of nitrogen gas, furthermore UV/ ozone after washing, after locking in substrate holder of vapor deposition equipment, vapor deposition tank the vacuum was done in  $3 \times 10^{-6} \text{ Torr}$ . First, on ITO transparent electrode, with vapor deposition rate  $0.2 \text{ nm/sec}$  vapor deposition it did 4,4'-bis (N - phenyl - N - (3' - methylphenyl) amino) biphenyl, in thickness of  $75 \text{ nm}$ , made positive hole injection transport layer. Next, on that, from vapor deposition source which differs, with vapor deposition rate  $0.2 \text{ nm/sec}$  codeposition (weight ratio  $100:1$ ) it did tris (8 - quinolinolato) aluminum and compound (1 - 29), in thickness of  $50 \text{ nm}$ , it made the luminescent layer which combines electron-implanted transport layer. Furthermore on that, with vapor deposition rate  $0.2 \text{ nm/sec}$  codeposition (weight ratio  $10:1$ ) doing magnesium and the silver in thickness of  $200 \text{ nm}$ , it made cathode, produced the organic electroluminescent element. Furthermore vapor deposition executed while vacuum state of vapor deposition tank was maintained. In organic electroluminescent element which it produces, under dry atmosphere, when imparting it does direct current voltage of  $12 \text{ V}$ , current of  $58 \text{ mA/cm}^2$  flowed. light emitting of reddish amber of brightness  $1950 \text{ cd/m}^2$  was verified.

#### [0058] Working Example 19

Ultrasonic cleaning it did glass substrate which possesses ITO transparent electrode (anode) of thickness  $200 \text{ nm}$ , making use of neutral detergent, acetone and ethanol. substrate was dried making use of nitrogen gas, furthermore UV/ ozone after washing, after locking in substrate holder of vapor deposition equipment, vapor deposition tank the vacuum was done in  $3 \times 10^{-6} \text{ Torr}$ . First, on ITO transparent electrode, with vapor deposition rate  $0.2 \text{ nm/sec}$  vapor deposition it did 4,4'-bis

で、その上に、1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエンを、蒸着速度0.2 nm/sec で50 nmの厚さに蒸着し、発光層とした。次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムと化合物(1-1)を、異なる蒸着源から、蒸着速度0.2 nm/sec で50 nmの厚さに共蒸着(重量比100:4.0)し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2 nm/sec で200 nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、14 Vの直流電圧を印加したところ、52 mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れた。輝度2270 cd/m<sup>2</sup>の青色の発光が確認された。

#### 【0059】実施例20

厚さ200 nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torr に減圧した。まず、ITO透明電極上に、4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ]ビフェニルを、蒸着速度0.2 nm/sec で75 nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、化合物(1-14)を、蒸着速度0.2 nm/sec で50 nmの厚さに蒸着し、発光層とした。次いで、その上に、1, 3-ビス[5'-(p-tert-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール-2'-イル]ベンゼンを、蒸着速度0.2 nm/sec で50 nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度0.2 nm/sec で200 nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、14 Vの直流電圧を印加したところ、49 mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れた。輝度1990 cd/m<sup>2</sup>の赤橙色の発光が確認された。

#### 【0060】実施例21

厚さ200 nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基

(N-phenyl-N-(3"-methylphenyl) amino) biphenyl, in thickness of 75 nm, made positive hole injection transport layer. Next, on that, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it did 1,1,4,4-tetra phenyl-1,3-butadiene, in the thickness of 50 nm, made luminescent layer. Next, on that, from vapor deposition source which differs, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec codeposition (weight ratio 100:4.0) it did tris(8-quinolinolato) aluminum and compound (1-1), in thickness of 50 nm, made the electron-implanted transport layer. Furthermore on that, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec codeposition (weight ratio 10:1) doing magnesium and the silver, in thickness of 200 nm, it made cathode, produced the organic electroluminescent element. Furthermore vapor deposition executed while vacuum state of vapor deposition tank was maintained. In organic electroluminescent element which it produces, under dry atmosphere, when imparting it does direct current voltage of 14V, current of 52 mA/cm<sup>2</sup> flowed. light emission of blue of luminance 2270 cd/m<sup>2</sup> was verified.

#### [0059] Working Example 20

Ultrasonic cleaning it did glass substrate which possesses ITO transparent electrode (anode) of thickness 200 nm, making use of neutral detergent, acetone and ethanol. substrate was dried making use of nitrogen gas, furthermore UV/ ozone after washing, after locking in substrate holder of vapor deposition equipment, vapor deposition tank the vacuum was done in  $3 \times 10^{-6}$  Torr. First, on ITO transparent electrode, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it did 4, 4'-bis (N-phenyl-N-(3"-methylphenyl) amino) biphenyl, in thickness of 75 nm, made positive hole injection transport layer. Next, on that, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it did compound (1-14), in thickness of 50 nm, made luminescent layer. Next, on that, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec vapor deposition it did 1,3-bis (5'-(p-tert-butyl phenyl)-1,3,4-oxadiazole-2'-yl) benzene, in thickness of 50 nm, made electron-implanted transport layer. Furthermore on that, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec codeposition (weight ratio 10:1) doing magnesium and the silver in thickness of 200 nm, it made cathode, produced the organic electroluminescent element. Furthermore vapor deposition executed while vacuum state of vapor deposition tank was maintained. In organic electroluminescent element which it produces, under dry atmosphere, when imparting it does direct current voltage of 14V, current of 49 mA/cm<sup>2</sup> flowed. light emitting of reddish amber of brightness 1990 cd/m<sup>2</sup> was verified.

#### [0060] Working Example 21

Ultrasonic cleaning it did glass substrate which possesses ITO tra



板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torr に減圧した。まず、ITO透明電極上に、化合物(1-10)を、蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $55 \text{ nm}$ の厚さに蒸着し、発光層とした。次いで、その上に、1,3-ビス[5'-(p-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール-2'-イル]ベンゼンを、蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $75 \text{ nm}$ の厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $200 \text{ nm}$ の厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、 $15 \text{ V}$ の直流電圧を印加したところ、 $68 \text{ mA/cm}^2$ の電流が流れた。輝度 $1150 \text{ cd/m}^2$ の赤橙色の発光が確認された。

#### [0061] 実施例22

厚さ $200 \text{ nm}$ のITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した。次に、ITO透明電極上に、ポリ-N-ビニルカルバゾール(重量平均分子量 $150000$ )、1,1,4,4-テトラフェニル-1,3-ブタジエン(青色の発光成分)、クマリン6["3-(2'-ベンゾチアゾリル)-7-ジエチルアミノクマリン"(緑色の発光成分)]、および化合物(1-5)を、それぞれ重量比100:5:3:2の割合で含有する3重量%クロロエタン溶液を用いて、ディップコート法により、 $400 \text{ nm}$ の発光層を形成した。次に、この発光層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torr に減圧した。さらに、発光層の上に、3-(4'-tert-ブチルフェニル)-4-フェニル-5-(4'-ビフェニル)-1,2,4-トリアゾールを、蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $20 \text{ nm}$ の厚さに蒸着した後、さらにその上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $30 \text{ nm}$ の厚さに蒸着し電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度 $0.2 \text{ nm/sec}$ で $200 \text{ nm}$ の厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、 $12 \text{ V}$ の直流電圧を印加したところ、 $74 \text{ mA/cm}^2$ の電流が流れた。輝度 $1280 \text{ cd/m}^2$ の白色の発光が確認された。

transparent electrode (anode) of thickness  $200 \text{ nm}$ , making use of neutral detergent, acetone and ethanol. substrate was dried making use of nitrogen gas, furthermore UV/ ozone after washing, after locking in substrate holder of vapor deposition equipment, vapor deposition tank the vacuum was done in  $3 \times 10^{-6}$  Torr. First, on ITO transparent electrode, with vapor deposition rate  $0.2 \text{ nm/sec}$  vapor deposition it did compound (1-10), in the thickness of  $55 \text{ nm}$ , made luminescent layer. Next, on that, with vapor deposition rate  $0.2 \text{ nm/sec}$  vapor deposition it did 1,3-bis (5'-(p-t-butyl phenyl)-1,3,4-oxadiazole-2'-yl) benzene, in thickness of  $75 \text{ nm}$ , made electron-implanted transport layer. Furthermore on that, with vapor deposition rate  $0.2 \text{ nm/sec}$  codeposition (weight ratio 10:1) doing magnesium and the silver in thickness of  $200 \text{ nm}$ , it made cathode, produced the organic electroluminescent element. Furthermore vapor deposition executed while vacuum state of vapor deposition tank was maintained. In organic electroluminescent element which it produces, under dry atmosphere, when imparting it does direct current voltage of  $15 \text{ V}$ , current of  $68 \text{ mA/cm}^2$  flowed. light emitting of reddish amber of brightness  $1150 \text{ cd/m}^2$  was verified.

#### [0061] Working Example 22

Ultrasonic cleaning it did glass substrate which possesses ITO transparent electrode (anode) of thickness  $200 \text{ nm}$ , making use of neutral detergent, acetone and ethanol. It dried substrate making use of nitrogen gas, furthermore UV/ ozone washed. Next, on ITO transparent electrode, luminescent layer of  $400 \text{ nm}$  was formed poly N-vinyl carbazole (weight average molecular weight  $150000$ ) and the 1,1,4,4-tetra phenyl-1,3-butadiene (light emission component of blue), making use of 3 wt% dichloroethane solution which contains the coumarin 6 ("3-(2'-benzo thiazolyl)-7-di ethylamino coumarin" (light emission component of green color)), and compound (1-5), at ratio of respective weight ratio 100:5:3:2, with dip coating method. Next, after locking glass substrate which possesses this luminescent layer, in substrate holder of vapor deposition equipment, vapor deposition tank vacuum was done in  $3 \times 10^{-6}$  Torr. Furthermore, on luminescent layer, 3-(4'-t-butyl phenyl)-4-phenyl-5-(4'-biphenyl)-1,2,4-triazole, with vapor deposition rate  $0.2 \text{ nm/sec}$  in the thickness of  $20 \text{ nm}$  vapor deposition after doing, furthermore on that, with the vapor deposition rate  $0.2 \text{ nm/sec}$  vapor deposition it did tris (8-quinolinolato) aluminum, in thickness of  $30 \text{ nm}$  and made electron-implanted transport layer. Furthermore on that, with vapor deposition rate  $0.2 \text{ nm/sec}$  codeposition (weight ratio 10:1) doing magnesium and the silver in thickness of  $200 \text{ nm}$ , it made cathode, produced the organic electroluminescent element. Furthermore vapor deposition executed while vacuum state of vapor deposition tank was maintained. In organic electroluminescent element which it produces, under dry atmosphere, when imparting it does direct current voltage of



## 【0062】実施例23

厚さ200nmのITO透明電極（陽極）を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した。次に、ITO透明電極上に、ポリ-N-ビニルカルバゾール（重量平均分子量150000）、1,3-ビス〔5'-(p-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール-2'-イル〕ベンゼンおよび化合物（1-35）を、それぞれ重量比100:30:3の割合で含有する3重量%ジクロロエタン溶液を用いて、ディップコート法により、300nmの発光層を形成した。次に、この発光層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torr に減圧した。さらに、発光層の上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着（重量比10:1）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、15Vの直流電圧を印加したところ、 $76 \text{ mA/cm}^2$ の電流が流れた。輝度 $1360 \text{ cd/m}^2$ の赤橙色の発光が確認された。

## 【0063】比較例3

実施例23において、発光層の形成に際して、化合物（1-35）の代わりに、1,1,4,4-テトラフェニル-1,3-ブタジエンを使用した以外は、実施例23に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界素子に、乾燥雰囲気下、15Vの直流電圧を印加したところ、 $86 \text{ mA/cm}^2$ の電流が流れた。輝度 $680 \text{ cd/m}^2$ の青色の発光が確認された。

## 【0064】実施例24

厚さ200nmのITO透明電極（陽極）を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した。次に、ITO透明電極上に、ポリカーボネート（重量平均分子量50000）、4,4'-ビス〔N-フェニル-N-(3'-メチルフェニル)アミノ〕ビフェニル、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソ-ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウムおよび化合物（1-7）を、それぞれ重量比100:40:60:1の割合で含有する3重量%ジクロロエタン溶液を用いて、ディップコート法により、300nmの発光層を形成した。次に、この発光層を有するガラス基板を、蒸

12V, current of  $74 \text{ mA/cm}^2$  flowed. light emission of white of luminance  $1280 \text{ cd/m}^2$  was verified.

## [0062] Working Example 23

Ultrasonic cleaning it did glass substrate which possesses ITO transparent electrode (anode) of thickness 200 nm, making use of neutral detergent, acetone and ethanol. It dried substrate making use of nitrogen gas, furthermore UV/ ozonewashed. Next, on ITO transparent electrode, luminescent layer of 300 nm was formed making use of the poly N-vinyl carbazole (weight average molecular weight 150000), 1,3-bis (5'-(p-t-butyl phenyl)-1,3,4-oxadiazole-2'-yl) benzene and 3 wt% dichloroethane solution which contains compound (1-35), at ratio of respective weight ratio 100:30:3, with dip coating method. Next, after locking glass substrate which possesses this luminescent layer, in substrate holder of vapor deposition equipment, vapor deposition tank vacuum was done in  $3 \times 10^{-6}$  Torr. Furthermore, on luminescent layer, with vapor deposition rate 0.2 nm/sec codeposition (weight ratio 10:1) doing magnesium and silver, in thickness of 200 nm, it made cathode, produced the organic electroluminescent element. In organic electroluminescent element which it produces, under dry atmosphere, when imparting it does direct current voltage of 15V, current of  $76 \text{ mA/cm}^2$  flowed. light emitting of reddish amber of brightness  $1360 \text{ cd/m}^2$  was verified.

## [0063] Comparative Example 3

In Working Example 23, at time of formation of luminescent layer, other than using 1,1,4,4-tetra phenyl-1,3-butadiene in place of compound (1-35), organic electroluminescent element was produced with method which is stated in Working Example 23. In organic electric field element which it produces, under dry atmosphere, when imparting it does direct current voltage of 15V, current of  $86 \text{ mA/cm}^2$  flowed. light emission of blue of luminance  $680 \text{ cd/m}^2$  was verified.

## [0064] Working Example 24

Ultrasonic cleaning it did glass substrate which possesses ITO transparent electrode (anode) of thickness 200 nm, making use of neutral detergent, acetone and ethanol. It dried substrate making use of nitrogen gas, furthermore UV/ ozonewashed. Next, on ITO transparent electrode, luminescent layer of 300 nm was formed polycarbonate (weight average molecular weight 50000) and the 4,4'-bis (N-phenyl-N-(3'-methylphenyl) amino) biphenyl, making use of bis (2-methyl-8-quinolinolato) aluminum-oxo-bis (2-methyl-8-quinolinolato) aluminum and 3 wt% dichloroethane solution which contains compound (1-7), at ratio of respective weight ratio 100:40:60:1, with dip

着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を  $3 \times 10^{-6}$  Torr に減圧した。さらに、発光層の上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $200 \text{ nm}$  の厚さに共蒸着（重量比  $10:1$ ）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、 $15 \text{ V}$  の直流電圧を印加したところ、 $66 \text{ mA/cm}^2$  の電流が流れた。輝度  $1070 \text{ cd/m}^2$  の赤橙色の発光が確認された。

#### 【0065】実施例25

ガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した。次に、ガラス基板上に、化合物（1-1）を、蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $100 \text{ nm}$  の厚さに蒸着した。その上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度  $0.2 \text{ nm/sec}$  で  $200 \text{ nm}$  の厚さに共蒸着（重量比  $10:1$ ）して陰極とした。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。その後、陰極上にスコッチテープを張り付けた後、スコッチテープを剥離したところ、陰極と共に、化合物（1-1）の薄膜もガラス基板から剥離し、陰極との密着力は良好であることが判明した。

#### 【0066】比較例4

実施例25において、化合物（1-1）の代わりに、1, 3, 5, 7, 8-ペンタメチル-4, 4-ジフルオロ-4-ボラ-3a, 4a-ジアザ-s-インダセンを使用した以外は、実施例25に記載の方法により陰極を蒸着した薄膜を作製した。その後、陰極上にスコッチテープを張り付けた後、スコッチテープを剥離したところ、陰極と1, 3, 5, 7, 8-ペンタメチル-4, 4-ジフルオロ-4-ボラ-3a, 4a-ジアザ-s-インダセンの薄膜の間で剥離し、陰極との密着力は不良であることが判明した。

#### 【0067】

【発明の効果】本発明により、発光輝度が優れた有機電界発光素子を提供することが可能になった。

#### 【図面の簡単な説明】

【図1】有機電界発光素子の1例（A）の概略構造図である。

coating method. Next, after locking glass substrate which possesses this luminescent layer, in substrate holder of vapor deposition equipment, vapor deposition tank vacuum was done in  $3 \times 10^{-6}$  Torr. Furthermore, on luminescent layer, with vapor deposition rate  $0.2 \text{ nm/sec}$  codeposition (weight ratio  $10:1$ ) doing magnesium and silver, in thickness of  $200 \text{ nm}$ , it made cathode, produced the organic electroluminescent element. In organic electroluminescent element which it produces, under dry atmosphere, when imparting it does direct current voltage of  $15 \text{ V}$ , current of  $66 \text{ mA/cm}^2$  flowed. light emitting of reddish amber of brightness  $1070 \text{ cd/m}^2$  was verified.

#### [0065] Working Example 25

Ultrasonic cleaning it did glass substrate, making use of neutral detergent, acetone and the ethanol. It dried substrate making use of nitrogen gas, furthermore UV/ ozone washed. Next, on glass substrate, compound (1-1), with vapor deposition rate  $0.2 \text{ nm/sec}$  vapor deposition was done in the thickness of  $100 \text{ nm}$ . On that, with vapor deposition rate  $0.2 \text{ nm/sec}$  codeposition (weight ratio  $10:1$ ) doing magnesium and silver, in the thickness of  $200 \text{ nm}$ , it made cathode. Furthermore vapor deposition executed while vacuum state of vapor deposition tank was maintained. after that, after attaching Scotch tape on cathode, the Scotch tape when it peels off, with cathode, also thin film of compound (1-1) peeled off from glass substrate, as for adhesive force of cathode being satisfactory was ascertained.

#### [0066] Comparative Example 4

In Working Example 25, other than using 1,3,5,7,8-pentamethyl-4,4-di fluoro-4-bora-3a,4a-di aza-s-indacene in place of compound (1-1), thin film which cathode vapor deposition is done was produced with method which is stated in Working Example 25. after that, after attaching Scotch tape on cathode, the Scotch tape when it peels off, it peeled off between thin film of cathode and 1,3,5,7,8-pentamethyl-4,4-di fluoro-4-bora-3a,4a-di aza-s-indacene, as for adhesive force of the cathode being a deficiency was ascertained.

#### [0067]

[Effects of the Invention] With this invention, it became possible to offer organic electroluminescent element where light emission luminance is superior.

#### [Brief Explanation of the Drawing(s)]

[Figure 1] It is a outline structural diagram of 1 example (A) of organic electroluminescent element.

【図 2】有機電界発光素子の 1 例 (B) の概略構造図である。

[Figure 2] It is a outline structural diagram of 1 example (B) of organic electroluminescent element.

【図 3】有機電界発光素子の 1 例 (C) の概略構造図である。

[Figure 3] It is a outline structural diagram of 1 example (C) of organic electroluminescent element.

【図 4】有機電界発光素子の 1 例 (D) の概略構造図である。

[Figure 4] It is a outline structural diagram of 1 example (D) of organic electroluminescent element.

【図 5】有機電界発光素子の 1 例 (E) の概略構造図である。

[Figure 5] It is a outline structural diagram of 1 example (E) of organic electroluminescent element.

【図 6】有機電界発光素子の 1 例 (F) の概略構造図である。

[Figure 6] It is a outline structural diagram of 1 example (F) of organic electroluminescent element.

【図 7】有機電界発光素子の 1 例 (G) の概略構造図である。

[Figure 7] It is a outline structural diagram of 1 example (G) of organic electroluminescent element.

【図 8】有機電界発光素子の 1 例 (H) の概略構造図である。

[Figure 8] It is a outline structural diagram of 1 example (H) of organic electroluminescent element.

【符号の説明】

[Explanation of Reference Signs in Drawings]

1 : 基板 |

1: Substrate

2 : 陽極 |

2: Anode

3 : 正孔注入輸送層 |

3: Positive hole injection transport layer

3 a : 正孔注入輸送成分

3a: Positive hole injection transport component

4 : 発光層

4: Luminescent layer

4 a : 発光成分

4a: Light emission component

5 : 電子注入輸送層 |

5: Electron-implanted transport layer

5" : 電子注入輸送層

5": Electron-implanted transport layer

5 a : 電子注入輸送成分

5a: Electron injection transport component

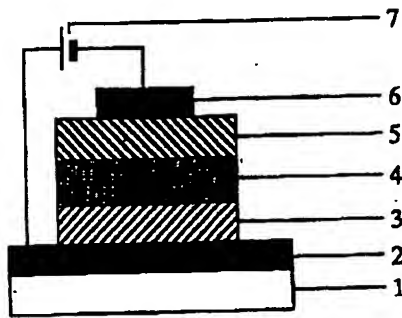
6 : 陰極 |

6: Cathode

7 : 電源 |

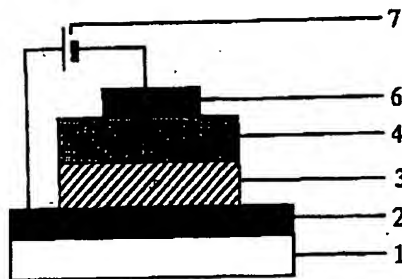
7: Power supply

【図 1】 |



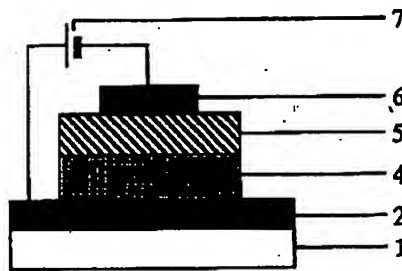
[Figure 1]

【図 2】 |



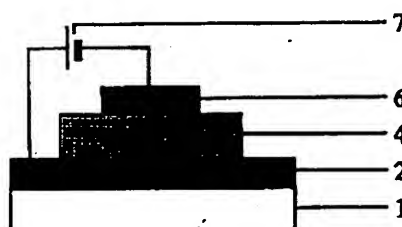
[Figure 2]

【図 3】 |



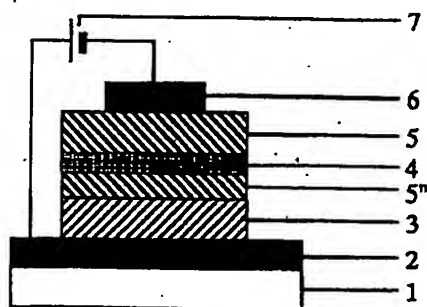
[Figure 3]

【図 4】 |



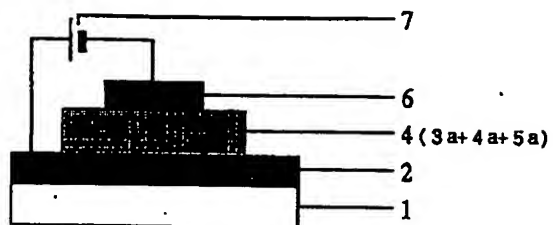
[Figure 4]

【図 5】 |



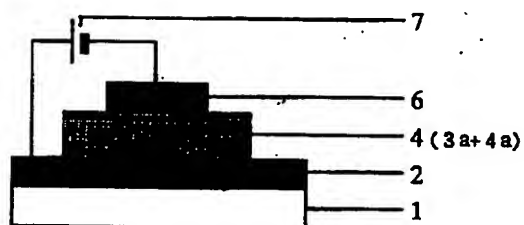
[Figure 5]

【図 6】 |



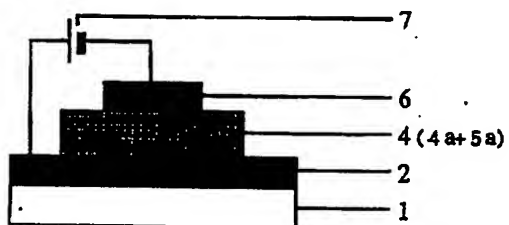
[Figure 6]

【図 7】 |



[Figure 7]

【図 8】 |



[Figure 8]

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-97180

(43) 公開日 平成11年(1999) 4月9日

(51) Int.Cl.<sup>4</sup>

識別記号

F I

H 0 5 B 33/14

H 0 5 B 33/14

B

C 0 9 K 11/06

C 0 9 K 11/06

Z

H 0 5 B 33/22

H 0 5 B 33/22

B

D

審査請求 未請求 請求項の数6 O L (全 19 頁)

(21) 出願番号 特願平9-258971

(22) 出願日 平成9年(1997) 9月24日

(71) 出願人 000005887

三井化学株式会社

東京都千代田区霞が関三丁目2番5号

(72) 発明者 西本 泰三

神奈川県横浜市栄区笠間町1190番地 三井

東圧化学株式会社内

(72) 発明者 三沢 伝美

神奈川県横浜市栄区笠間町1190番地 三井

東圧化学株式会社内

(72) 発明者 杉本 賢一

神奈川県横浜市栄区笠間町1190番地 三井

東圧化学株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 有機電界発光素子

(57) 【要約】

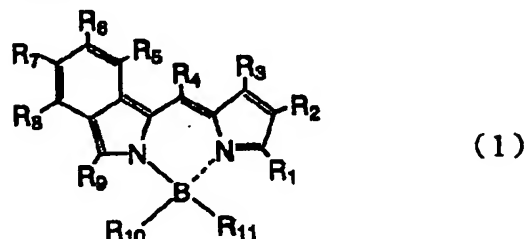
【解決手段】 一対の電極間に、ベンゾピロメテン系化合物を少なくとも1種含有する層を、少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子。

【効果】 発光輝度が優れた有機電界発光素子を提供する。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 一对の電極間に、下記一般式(1)(化1)で表される化合物を少なくとも1種含有する層を、少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子。

## 【化1】



〔式中、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_5$ 、 $R_6$ 、 $R_7$ 、 $R_8$ 、 $R_9$  はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、アルキル基、ハロゲンアルキル基、アルコキシアルキル基、アルコキシ基、アルコキシアルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、ジアルキルアミノカルボニル基、アルキルカルボニルアミノ基、アリールカルボニルアミノ基、アリールアミノカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アラールキル基、炭素環式アリール基、複素環式アリール基、アルキルチオ基、アリールチオ基、アルケニルオキシカルボニル基、アラールキルオキシカルボニル基、アルコキシカルボニルアルコキシカルボニル基、アルキルカルボニルアルコキシカルボニル基、ジ(アルコキシアルキル)アミノカルボニル基、またはアルケニル基を表し、 $R_4$  は水素原子、シアノ基、アルキル基、アラールキル基、炭素環式アリール基、複素環式アリール基、またはアルケニル基を表し、 $R_{10}$  および  $R_{11}$  はフッ素原子、アルキル基、アルコキシ基、アラールキル基、炭素環式アリール基、または複素環式アリール基を表す〕

【請求項2】 一般式(1)で表される化合物を含有する層が、発光層である請求項1記載の有機電界発光素子。

【請求項3】 一般式(1)で表される化合物を含有する層が、電子注入輸送層である請求項1記載の有機電界発光素子。

【請求項4】 一般式(1)で表される化合物を含有する層が、さらに発光性有機金属錯体を含有する請求項1～3のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【請求項5】 一对の電極間に、さらに、正孔注入輸送層を有する請求項1～4のいずれかに記載の有機電界発光素子。

【請求項6】 一对の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する請求項1～5のいずれかに記載の有機電界発光素子。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、有機電界発光素子

に関する。

## 【0002】

【従来の技術】 従来、無機電界発光素子は、例えば、バックライトなどのパネル型光源として使用されてきたが、該発光素子を駆動させるには、交流の高電圧が必要である。最近になり、発光材料に有機材料を用いた有機電界発光素子(有機エレクトロルミネッセンス素子:有機EL素子)が開発された〔Appl. Phys. Lett., 51、913 (1987)〕。有機電界発光素子は、蛍光性有機化合物を含む薄膜を、陽極と陰極間に挟持された構造を有し、該薄膜に電子および正孔(ホール)を注入して、再結合させることにより励起子(エキシトン)を生成させ、この励起子が失活する際に放出される光を利用して発光する素子である。有機電界発光素子は、数V～数十V程度の直流の低電圧で、発光が可能であり、また蛍光性有機化合物の種類を選択することにより、種々の色(例えば、赤色、青色、緑色)の発光が可能である。このような特徴を有する有機電界発光素子は、種々の発光素子、表示素子等への応用が期待されている。しかしながら、一般に、発光輝度が低く、実用上充分ではない。

【0003】 発光輝度を向上させる方法として、発光層として、例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムをホスト化合物とし、クマリン誘導体、ピラン誘導体をゲスト化合物(ドーパント)として用いた有機電界発光素子が提案されている〔J. Appl. Phys., 65、3610 (1989)〕。また、発光層として、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムをホスト化合物とし、ピロメテン誘導体(例えば、1, 3, 5, 7, 8-ペンタメチル-4, 4-ジフルオロ-4-ボラ-3a, 4a-ジアザ-s-インダセン)をゲスト化合物として用いた有機電界発光素子が提案されている(特開平9-118880号公報)。しかしながら、該公報に記載されているピロメテン誘導体を使用すると、発光色は緑ないし黄緑色であり、また充分な発光輝度を有しているとはいえないことが判明した。さらには、特開平9-118880号公報に記載されているピロメテン誘導体(例えば、1, 3, 5, 7, 8-ペンタメチル-4, 4-ジフルオロ-4-ボラ-3a, 4a-ジアザ-s-インダセン)を含有する層と電極(例えば、陰極)との密着性は乏しく、長期間の使用に際しては、その改良が必要であることが判明した。現在では、橙色ないし赤色に発光し、且つ、高輝度に発光する有機電界発光素子が望まれている。

## 【0004】

【発明が解決しようとする課題】 本発明の課題は、発光効率に優れ、高輝度に発光する有機電界発光素子を提供することである。

## 【0005】

【課題を解決するための手段】 本発明者等は、有機電界発光素子に関して鋭意検討した結果、本発明を完成する



に至った。すなわち、本発明は、

① 一对の電極間に、下記一般式(1)(化2)で表される化合物を少なくとも1種含有する層を、少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子、

② 一般式(1)で表される化合物を含有する層が、発光層である①記載の有機電界発光素子、

③ 一般式(1)で表される化合物を含有する層が、電子注入輸送層である①記載の有機電界発光素子、

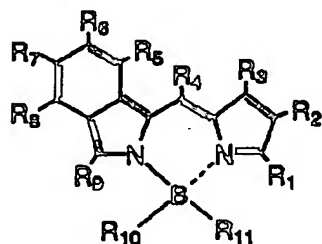
④ 一般式(1)で表される化合物を含有する層が、さらに発光性有機金属錯体を含有する前記①～③のいずれかに記載の有機電界発光素子、

⑤ 一对の電極間に、さらに、正孔注入輸送層を有する前記①～④のいずれかに記載の有機電界発光素子、

⑥ 一对の電極間に、さらに、電子注入輸送層を有する前記①～⑤のいずれかに記載の有機電界発光素子、に関するものである。

【0006】

【化2】



(1)

〔式中、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_5$ 、 $R_6$ 、 $R_7$ 、 $R_8$ 、 $R_9$  はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、アルキル基、ハロゲノアルキル基、アルコキシアルキル基、アルコキシ基、アルコキシアルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、ジアルキルアミノカルボニル基、アルキルカルボニルアミノ基、アリールカルボニルアミノ基、アリールアミノカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アラルキル基、炭素環式アリール基、複素環式アリール基、アルキルチオ基、アリールチオ基、アルケニルオキシカルボニル基、アラルキルオキシカルボニル基、アルコキシカルボニルアルコキシカルボニル基、アルキルカルボニルアルコキシカルボニル基、ジ(アルコキシアルキル)アミノカルボニル基、またはアルケニル基を表し、 $R_4$  は水素原子、シアノ基、アルキル基、アラルキル基、炭素環式アリール基、複素環式アリール基、またはアルケニル基を表し、 $R_{10}$  および  $R_{11}$  はフッ素原子、アルキル基、アルコキシ基、アラルキル基、炭素環式アリール基、または複素環式アリール基を表す〕

【0007】

【発明の実施の形態】以下、本発明に関して詳細に説明する。本発明の有機電界発光素子は、一对の電極間に、前記一般式(1)で表されるベンゾピロメテン系化合物を少なくとも1種含有する層を、少なくとも一層挟持し

てなるものである。前記一般式(1)で表されるベンゾピロメテン系化合物において、 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_5$ 、 $R_6$ 、 $R_7$ 、 $R_8$ 、 $R_9$  はそれぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、シアノ基、アルキル基、ハロゲノアルキル基、アルコキシアルキル基、アルコキシ基、アルコキシアルコキシ基、アリールオキシ基、アシル基、アルコキシカルボニル基、ジアルキルアミノカルボニル基、アルキルカルボニルアミノ基、アリールカルボニルアミノ基、アリールアミノカルボニル基、アリールオキシカルボニル基、アラルキル基、炭素環式アリール基、複素環式アリール基、アルキルチオ基、アリールチオ基、アルケニルオキシカルボニル基、アラルキルオキシカルボニル基、アルコキシカルボニルアルコキシカルボニル基、アルキルカルボニルアルコキシカルボニル基、ジ(アルコキシアルキル)アミノカルボニル基、またはアルケニル基を表し、好ましくは、水素原子、アルキル基、炭素環式アリール基を表す。

【0008】 $R_1$ 、 $R_2$ 、 $R_3$ 、 $R_5$ 、 $R_6$ 、 $R_7$ 、 $R_8$  および  $R_9$  の具体例としては、水素原子；フッ素、塩素、臭素、ヨウ素のハロゲン原子；シアノ基；例えば、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、*iso*-プロピル基、*n*-ブチル基、*iso*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*iso*-ペンチル基、2-メチルブチル基、1-メチルブチル基、*neo*-ペンチル基、1,2-ジメチルプロピル基、1,1-ジメチルプロピル基、*cyclo*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、4-メチルペンチル基、3-メチルペンチル基、2-メチルペンチル基、1-メチルペンチル基、3,3-ジメチルブチル基、2,3-ジメチルブチル基、1,3-ジメチルブチル基、2,2-ジメチルブチル基、1,2-ジメチルブチル基、1,1-ジメチルブチル基、3-エチルブチル基、2-エチルブチル基、1-エチルブチル基、1,2,2-トリメチルブチル基、1,1,2-トリメチルブチル基、1-エチル-2-メチルプロピル基、*cyclo*-ヘキシル基、*n*-ヘプタチル基、2-メチルヘキシル基、3-メチルヘキシル基、4-メチルヘキシル基、5-メチルヘキシル基、2,4-ジメチルペンチル基、*n*-オクタチル基、2-エチルヘキシル基、2,5-ジメチルヘキシル基、2,5,5-トリメチルペンチル基、2,4-ジメチルヘキシル基、2,2,4-トリメチルペンチル基、*n*-ノニル基、3,5,5-トリメチルヘキシル基、*n*-デシル基、4-エチルオクタチル基、4-エチル-4,5-ジメチルヘキシル基、*n*-ウンデシル基、*n*-ドデシル基、1,3,5,7-テトラメチルオクタチル基、4-ブチルオクタチル基、6,6-ジエチルオクタチル基、*n*-トリデシル基、6-メチル-4-ブチルオクタチル基、*n*-テトラデシル基、*n*-ペンタデシル基、3,5-ジメチルヘプタチル基、2,6-ジメチルヘプタチル基、2,4-ジメチルヘプタチル基、2,2,5,5-テトラメチルヘキシル基、1-*cyclo*-ペンチル-2,2-ジメチルプロピル基、1-*cyclo*-ヘキシル-2,2-ジメチルプロピル基等の直鎖、分岐または環状のアルキル基；

【0009】例えば、クロロメチル基、ジクロロメチル

基、フルオロメチル基、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基、ノナフルオロブチル基等のハロゲンアルキル基；例えば、メトキシエチル基、エトキシエチル基、iso-プロピルオキシエチル基、3-メトキシプロピル基、2-メトキシブチル基等のアルコキシアルキル基；例えば、メトキシ基、エトキシ基、n-プロポキシ基、iso-プロポキシ基、n-ブトキシ基、iso-ブトキシ基、sec-ブトキシ基、t-ブトキシ基、n-ペントキシ基、iso-ペントキシ基、neo-ペントキシ基、n-ヘキシルオキシ基、n-ドデシルオキシ基等のアルコキシ基；例えば、メトキシエトキシ基、エトキシエトキシ基、3-メトキシプロピルオキシ基、3-(iso-プロピルオキシ)プロピルオキシ基等のアルコキシアルコキシ基；例えば、フェノキシ基、2-メチルフェノキシ基、4-メチルフェノキシ基、4-tert-ブチルフェノキシ基、2-メトキシフェノキシ基、4-iso-プロピルフェノキシ基等のアリールオキシ基；例えば、ホルミル基、アセチル基、エチルカルボニル基、n-プロピルカルボニル基、iso-プロピルカルボニル基、n-ブチルカルボニル基、iso-ブチルカルボニル基、sec-ブチルカルボニル基、t-ブチルカルボニル基、n-ペンチルカルボニル基、iso-ペンチルカルボニル基、neo-ペンチルカルボニル基、2-メチルブチルカルボニル基、ニトロベンジルカルボニル基等のアシル基；例えば、メトキシカルボニル基、エトキシカルボニル基、イソプロピルオキシカルボニル基、2,4-ジメチルブチルオキシカルボニル基等のアルコキシカルボニル基；

【0010】例えば、ジメチルアミノカルボニル基、ジエチルアミノカルボニル基、ジ-n-プロピルアミノカルボニル基、ジ-n-ブチルアミノカルボニル基、N-メチル-N-シクロヘキシルアミノカルボニル基等のジアルキルアミノカルボニル基；例えば、アセチルアミノ基、エチルカルボニルアミノ基、ブチルカルボニルアミノ基等のアルキルカルボニルアミノ基；例えば、フェニルアミノカルボニル基、4-メチルフェニルアミノカルボニル基、2-メトキシフェニルアミノカルボニル基、4-n-プロピルフェニルアミノカルボニル基等のアリールアミノカルボニル基；例えば、フェニルカルボニルアミノ基、4-エチルフェニルカルボニルアミノ基、3-ブチルフェニルカルボニルアミノ基等のアリールカルボニルアミノ基；例えば、フェノキシカルボニル基、2-メチルフェノキシカルボニル基、4-メトキシフェノキシカルボニル基、4-tert-ブチルフェノキシカルボニル基等のアリールオキシカルボニル基；例えば、ベンジル基、ニトロベンジル基、シアノベンジル基、ヒドロキシベンジル基、メチルベンジル基、ジメチルベンジル基、トリメチルベンジル基、ジクロロベンジル基、メトキシベンジル基、エトキシベンジル基、トリフルオロメチルベンジル基、ナフチルメチル基、ニトロナフチルメチル基、シアノナフチルメチル基、ヒドロキシナフチルメチル基、メチルナフチルメチル

ル基、トリフルオロメチルナフチルメチル基等のアラールキル基；

【0011】例えば、フェニル基、ニトロフェニル基、シアノフェニル基、ヒドロキシフェニル基、メチルフェニル基、ジメチルフェニル基、トリメチルフェニル基、ジクロロフェニル基、メトキシフェニル基、エトキシフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、N,N-ジメチルアミノフェニル基、ナフチル基、ニトロナフチル基、シアノナフチル基、ヒドロキシナフチル基、メチルナフチル基、トリフルオロメチルナフチル基等の炭素環式アリール基；例えば、ピロリル基、チエニル基、フラニル基、オキサゾイル基、イソオキサゾイル基、オキサジアゾイル基、イミダゾイル基、ベンゾオキサゾイル基、ベンゾチアゾイル基、ベンゾイミダゾイル基、ベンゾフラニル基、インドイル基等の複素環式アリール基；例えば、メチルチオ基、エチルチオ基、n-プロピルチオ基、iso-プロピルチオ基、n-ブチルチオ基、iso-ブチルチオ基、sec-ブチルチオ基、t-ブチルチオ基、n-ペンチルチオ基、iso-ペンチルチオ基、2-メチルブチルチオ基、1-メチルブチルチオ基、neo-ペンチルチオ基、1,2-ジメチルプロピルチオ基、1,1-ジメチルプロピルチオ基等のアルキルチオ基；例えば、フェニルチオ基、4-メチルフェニルチオ基、2-メトキシフェニルチオ基、4-tert-ブチルフェニルチオ基等のアリールチオ基；例えば、アリルオキシカルボニル基、2-ブテノキシカルボニル基等のアルケニルオキシカルボニル基；例えば、ベンジルオキシカルボニル基、フェネチルオキシカルボニル基等のアラールキルオキシカルボニル基；

【0012】例えば、メトキシカルボニルメトキシカルボニル基、エトキシカルボニルメトキシカルボニル基、n-プロポキシカルボニルメトキシカルボニル基、イソプロポキシカルボニルメトキシカルボニル基等のアルコキシカルボニルアルコキシカルボニル基；例えば、メチルカルボニルメトキシカルボニル基、エチルカルボニルメトキシカルボニル基等のアルキルカルボニルアルコキシカルボニル基；例えば、ジ(メトキシエチル)アミノカルボニル基、ジ(エトキシメチル)アミノカルボニル基、ジ(エトキシエチル)アミノカルボニル基、ジ(プロポキシエチル)アミノカルボニル基等のジ(アルコキシアルキル)アミノカルボニル基；例えば、ビニル基、プロペニル基、1-ブテニル基、iso-ブテニル基、1-ペンテニル基、2-ペンテニル基、2-メチル-1-ブテニル基、3-メチル-1-ブテニル基、2-メチル-2-ブテニル基、2,2-ジシアノビニル基、2-シアノ-2-メチルカルボキシルビニル基、2-シアノ-2-メチルスルホンビニル基等のアルケニル基を挙げることができる。

【0013】R<sub>4</sub>は水素原子、シアノ基、アルキル基、アラールキル基、炭素環式アリール基、複素環式アリール基、またはアルケニル基を表し、好ましくは、水素原子、アルキル基を表す。R<sub>4</sub>の具体例としては、水素原

子；シアノ基；例えば、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、*iso*-プロピル基、*n*-ブチル基、*iso*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*iso*-ペンチル基、2-メチルブチル基、1-メチルブチル基、*neo*-ペンチル基、1,2-ジメチルプロピル基、1,1-ジメチルプロピル基、*cyclo*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、4-メチルペンチル基、3-メチルペンチル基、2-メチルペンチル基、1-メチルペンチル基、3,3-ジメチルブチル基、2,3-ジメチルブチル基、1,3-ジメチルブチル基、2,2-ジメチルブチル基、1,2-ジメチルブチル基、1,1-ジメチルブチル基、3-エチルブチル基、2-エチルブチル基、1-エチルブチル基、1,2,2-トリメチルブチル基、1,1,2-トリメチルブチル基、1-エチル-2-メチルプロピル基、*cyclo*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、2-メチルヘキシル基、3-メチルヘキシル基、4-メチルヘキシル基、5-メチルヘキシル基、2,4-ジメチルペンチル基、*n*-オクチル基、2-エチルヘキシル基、2,5-ジメチルヘキシル基、2,5,5-トリメチルペンチル基、2,4-ジメチルヘキシル基、2,2,4-トリメチルペンチル基、*n*-ノニル基、3,5,5-トリメチルヘキシル基、*n*-デシル基、4-エチルオクチル基、4-エチル-4,5-ジメチルヘキシル基、*n*-ウンデシル基、*n*-ドデシル基、1,3,5,7-テトラメチルオクチル基、4-ブチルオクチル基、6,6-ジエチルオクチル基、*n*-トリデシル基、6-メチル-4-ブチルオクチル基、*n*-テトラデシル基、*n*-ペンタデシル基、3,5-ジメチルヘプチル基、2,6-ジメチルヘプチル基、2,4-ジメチルヘプチル基、2,2,5,5-テトラメチルヘキシル基、1-*cyclo*-ペンチル-2,2-ジメチルプロピル基、1-*cyclo*-ヘキシル-2,2-ジメチルプロピル基等の直鎖、分岐または環状のアルキル基；

【0014】例えば、ベンジル基、ニトロベンジル基、シアノベンジル基、ヒドロキシベンジル基、メチルベンジル基、ジメチルベンジル基、トリメチルベンジル基、ジクロロベンジル基、メトキシベンジル基、エトキシベンジル基、トリフルオロメチルベンジル基、ナフチルメチル基、ニトロナフチルメチル基、シアノナフチルメチル基、ヒドロキシナフチルメチル基、メチルナフチルメチル基、トリフルオロメチルナフチルメチル基等のアラルキル基；例えば、フェニル基、ニトロフェニル基、シアノフェニル基、ヒドロキシフェニル基、メチルフェニル基、ジメチルフェニル基、トリメチルフェニル基、ジクロロフェニル基、メトキシフェニル基、エトキシフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、*N,N*-ジメチルアミノフェニル基、ナフチル基、ニトロナフチル基、シアノナフチル基、ヒドロキシナフチル基、メチルナフチル基、トリフルオロメチルナフチル基等の炭素環式アリール基；ビロリル基、チエニル基、フラニル基、オキサゾイル基、イソオキサゾイル基、オキサジアゾイル基、イミダゾイル基、ベンゾオキサゾイル基、ベンゾチアゾイル基、ベンゾイミダゾイル基、ベンゾフラニル基、インドイル基等の複素環式アリール基；例えば、ビニル

基、プロベニル基、1-ブテニル基、*iso*-ブテニル基、1-ペンテニル基、2-ペンテニル基、2-メチル-1-ブテニル基、3-メチル-1-ブテニル基、2-メチル-2-ブテニル基、2,2-ジシアノビニル基、2-シアノ-2-メチルカルボキシルビニル基、2-シアノ-2-メチルスルホンビニル基等のアルケニル基を挙げることができる。

【0015】 $R_{10}$ および $R_{11}$ はフッ素原子、アルキル基、アラルキル基、炭素環式アリール基、複素環式アリール基、またはアルコキシ基を表し、好ましくは、フッ素原子を表す。 $R_{10}$ および $R_{11}$ の具体例としては、フッ素原子；例えば、メチル基、エチル基、*n*-プロピル基、*iso*-プロピル基、*n*-ブチル基、*iso*-ブチル基、*sec*-ブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、*iso*-ペンチル基、2-メチルブチル基、1-メチルブチル基、*neo*-ペンチル基、1,2-ジメチルプロピル基、1,1-ジメチルプロピル基、*cyclo*-ペンチル基、*n*-ヘキシル基、4-メチルペンチル基、3-メチルペンチル基、2-メチルペンチル基、1-メチルペンチル基、3,3-ジメチルブチル基、2,3-ジメチルブチル基、1,3-ジメチルブチル基、2,2-ジメチルブチル基、1,2-ジメチルブチル基、1,1-ジメチルブチル基、3-エチルブチル基、2-エチルブチル基、1-エチルブチル基、1,2,2-トリメチルブチル基、1,1,2-トリメチルブチル基、1-エチル-2-メチルプロピル基、*cyclo*-ヘキシル基、*n*-ヘプチル基、2-メチルヘキシル基、3-メチルヘキシル基、4-メチルヘキシル基、5-メチルヘキシル基、2,4-ジメチルペンチル基、*n*-オクチル基、2-エチルヘキシル基、2,5-ジメチルヘキシル基、2,5,5-トリメチルペンチル基、2,4-ジメチルヘキシル基、2,2,4-トリメチルペンチル基、*n*-ノニル基、3,5,5-トリメチルヘキシル基、*n*-デシル基、4-エチルオクチル基、4-エチル-4,5-ジメチルヘキシル基、*n*-ウンデシル基、*n*-ドデシル基、1,3,5,7-テトラメチルオクチル基、4-ブチルオクチル基、6,6-ジエチルオクチル基、*n*-トリデシル基、6-メチル-4-ブチルオクチル基、*n*-テトラデシル基、*n*-ペンタデシル基、3,5-ジメチルヘプチル基、2,6-ジメチルヘプチル基、2,4-ジメチルヘプチル基、2,2,5,5-テトラメチルヘキシル基、1-*cyclo*-ペンチル-2,2-ジメチルプロピル基、1-*cyclo*-ヘキシル-2,2-ジメチルプロピル基等の直鎖、分岐または環状のアルキル基；

【0016】例えば、メトキシ基、エトキシ基、*n*-プロポキシ基、*iso*-プロポキシ基、*n*-ブトキシ基、*iso*-ブトキシ基、*sec*-ブトキシ基、*t*-ブトキシ基、*n*-ペントキシ基、*iso*-ペントキシ基、*neo*-ペントキシ基、*n*-ヘキシルオキシ基、*n*-ドデシルオキシ基等のアルコキシ基；例えば、ベンジル基、ニトロベンジル基、シアノベンジル基、ヒドロキシベンジル基、メチルベンジル基、ジメチルベンジル基、トリメチルベンジル基、ジクロロベンジル基、メトキシベンジル基、エトキシベンジル基、トリフルオロメチルベンジル基、ナフチルメチル基、ニトロナフチルメチル基、シアノナフチルメチル基、ヒドロキ

シナフチルメチル基、メチルナフチルメチル基、トリフルオロメチルナフチルメチル基等のアラルキル基;例えば、フェニル基、ニトロフェニル基、シアノフェニル基、ヒドロキシフェニル基、メチルフェニル基、ジメチルフェニル基、トリメチルフェニル基、ジクロロフェニル基、メトキシフェニル基、エトキシフェニル基、トリフルオロメチルフェニル基、N,N-ジメチルアミノフェニル基、ナフチル基、ニトロナフチル基、シアノナフチル基、ヒドロキシナフチル基、メチルナフチル基、トリフルオロメチルナフチル基等の炭素環式アリール基;ピロリル基、チエニル基、フラニル基、オキサゾイル基、イソオキサゾイル基、オキサジアゾイル基、イミダゾイル基、ベンゾオキサゾイル基、ベンゾチアゾイル基、ベンゾイミダゾイル基、ベンゾフラニル基、インドイル基等の複素環式アリール基を挙げることができる。

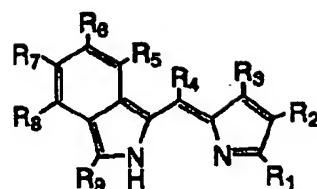
【0017】本発明の一般式(1)で示されるベンゾピロメテン化合物は、其自体公知の方法に従って製造することができる。例えば、Journal of Chemical Society,

Chemical Communication, 1994, 1129-1130に記載の方法に従い製造される一般式(2)(化3)で示される化合物と、三フッ化ホウ素類とを反応させて、一般式

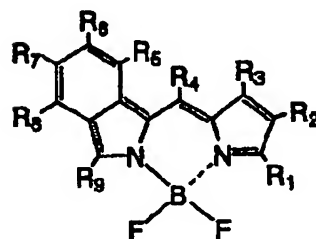
(3)(化3)で示される化合物を製造した後、フッ素原子を置換して一般式(1)で示されるベンゾピロメテン化合物を合成する。

【0018】

【化3】



(2)








(3)

(上式中、 $R_1 \sim R_9$  は前記に同じ。)本発明に用いられる一般式(1)で示されるベンゾピロメテン化合物の具体例としては、例えば、第1表(表1~3)に示す化合物を挙げることができるが、本発明はこれらの例示化合物に限定されるものではない。

【0019】

【表1】





















第1表

化合物	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	R <sub>5</sub>	R <sub>6</sub>	R <sub>7</sub>	R <sub>8</sub>	R <sub>9</sub>	R <sub>10</sub>	R <sub>11</sub>
1-1	CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	H	F	F
1-2	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	H	F	F
1-3	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	H	F	F
1-4	CH <sub>3</sub>	(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	H	F	F
1-5	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H	H	H	F	F
1-6	CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	t-Bu	H	H	F	F
1-7	CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	H	H	H	F	F
1-8		H		H	H	H	H	H	H	F	F
1-9	CH <sub>3</sub>	t-Bu	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	H	F	F
1-10		H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	H	F	F
1-11	CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>		H	H	H	H	H	H	F	F
1-12	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>		CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	F	F
1-13	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	H	H	F	F
1-14	H	t-Bu	H	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	F	F

【0020】

【表2】

第1表 (つづき)

化合物	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	R <sub>5</sub>	R <sub>6</sub>	R <sub>7</sub>	R <sub>8</sub>	R <sub>9</sub>	R <sub>10</sub>	R <sub>11</sub>
1-15	CO <sub>2</sub> C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	n-C <sub>8</sub> H <sub>17</sub>	CO <sub>2</sub> C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	-S-C <sub>6</sub> H <sub>4</sub> -t-Bu	OCH <sub>3</sub>	H	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	F
1-16	CH <sub>3</sub>	COOCH <sub>3</sub>		CN	OCH <sub>3</sub>	OCH <sub>3</sub>	OCH <sub>3</sub>	OCH <sub>3</sub>	H		F
1-17	CH <sub>3</sub>	Cl	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	H	H	Cl	H	H	 n-C <sub>8</sub> H <sub>17</sub>	n-C <sub>8</sub> H <sub>17</sub>
1-18		H	H	CN	H	H	H	H	H	CO <sub>2</sub> C <sub>2</sub> H <sub>5</sub> (CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> (CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
1-19	Br	CO <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> CO <sub>2</sub> CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	H		F
1-20	OCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	H	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CN	F	F
1-21		CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	OC <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	F	F
1-22	-S-t-Bu	Cl	Cl	H	H	t-Bu	t-Bu	H		 OCH <sub>3</sub>	F
1-23	CH <sub>3</sub>	n-C <sub>4</sub> H <sub>9</sub>	H		H	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	OCH <sub>3</sub>	OCH <sub>3</sub>
1-24	CH <sub>3</sub>		CH <sub>3</sub>		H	H	H	H	CO <sub>2</sub> CH=CH <sub>2</sub>	F	F
1-25		SO <sub>3</sub> H	H	CN	H	t-Bu	t-Bu	H	CO <sub>2</sub> - 	F	
1-26	CH <sub>3</sub>	CONH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	H		H			H	CO <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> COOCH <sub>3</sub> n-C <sub>8</sub> H <sub>17</sub>	n-C <sub>8</sub> H <sub>17</sub>	(CH <sub>2</sub> ) <sub>2</sub> CH(CH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>
1-27	CO <sub>2</sub> C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	NHCOOCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>		F
1-28	CH <sub>3</sub>	NHCO- 	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H		F	F

第1表 (つづき)

化合物	R <sub>1</sub>	R <sub>2</sub>	R <sub>3</sub>	R <sub>4</sub>	R <sub>5</sub>	R <sub>6</sub>	R <sub>7</sub>	R <sub>8</sub>	R <sub>9</sub>	R <sub>10</sub>	R <sub>11</sub>
1-29	CH <sub>3</sub>		CH <sub>3</sub>		H	H	H	H		OCH <sub>3</sub>	F
1-30		-S-	CH <sub>3</sub>	H	H	H	H	H	-S-	n-C <sub>8</sub> H <sub>17</sub>	n-C <sub>8</sub> H <sub>17</sub>
1-31	CH <sub>3</sub>	OCH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	CH <sub>3</sub>	t-Bu		
1-32	CH <sub>3</sub>	CONH-	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	H	H	H			
1-33	CH <sub>2</sub> OCH <sub>3</sub>	C <sub>2</sub> H <sub>5</sub>	CH <sub>3</sub>	CH=CH <sub>2</sub>	CH <sub>3</sub>	H	H	H			
1-34	C <sub>2</sub> F <sub>5</sub>	CON(CH <sub>2</sub> OCH <sub>3</sub> ) <sub>2</sub>	CH <sub>3</sub>	CN	CH <sub>3</sub>	H	H	H	CH=CH <sub>2</sub>	F	F
1-35	CH <sub>2</sub> OCH <sub>3</sub>	CO <sub>2</sub> -	CH <sub>3</sub>	H	CH <sub>3</sub>	OCH <sub>3</sub>	OCH <sub>3</sub>	OCH <sub>3</sub>		F	F
1-36	CH <sub>3</sub>	CH=CH <sub>2</sub>	H	H	H	OCH <sub>3</sub>	OCH <sub>3</sub>	OCH <sub>3</sub>		F	F

【0022】有機電界発光素子は、通常、一対の電極間に、少なくとも1種の発光成分を含有する発光層を、少なくとも一層挟持してなるものである。発光層に使用する化合物の正孔注入および正孔輸送、電子注入および電子輸送の各機能レベルを考慮し、所望に応じて、正孔注入輸送成分を含有する正孔注入輸送層または／および電子注入輸送成分を含有する電子注入輸送層を設けることもできる。例えば、発光層に使用する化合物の正孔注入機能、正孔輸送機能または／および電子注入機能、電子輸送機能が良好な場合には、発光層が正孔注入輸送層または／および電子注入輸送層を兼ねた型の素子の構成とすることができる。勿論、場合によっては、正孔注入輸

送層および電子注入輸送層の両方の層を設けない型の素子（一層型の素子）の構成とすることもできる。また、正孔注入輸送層、電子注入輸送層および発光層のそれぞれの層は、一層構造であっても多層構造であってもよく、正孔注入輸送層および電子注入輸送層は、それぞれの層において、注入機能を有する層と輸送機能を有する層を別々に設けて構成することもできる。

【0023】本発明の有機電界発光素子は、一対の電極間に、前記一般式（1）で表される化合物を少なくとも1種含有する層を、少なくとも一層挟持してなる有機電界発光素子である。本発明の有機電界発光素子において、一般式（1）で表される化合物は、正孔注入輸送成

分、発光成分または電子注入輸送成分に用いることが好ましく、発光成分または電子注入輸送成分に用いることがより好ましい。本発明の有機電界発光素子においては、一般式(1)で表される化合物は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0024】本発明の有機電界発光素子の構成としては、特に限定するものではなく、例えば、(A)陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図1)、(B)陽極/正孔注入輸送層/発光層/陰極型素子(図2)、(C)陽極/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図3)、(D)陽極/発光層/陰極型素子(図4)などを挙げることができる。さらに、発光層を電子注入輸送層で挟み込んだ型の素子である(E)陽極/正孔注入輸送層/電子注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子(図5)とすることもできる。

(D)型の素子構成としては、発光成分を一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子は勿論であるが、さらに、例えば、(F)正孔注入輸送成分、発光成分および電子注入輸送成分を混合させた一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子(図6)、(G)正孔注入輸送成分および発光成分を混合させた一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子(図7)、または(H)発光成分および電子注入輸送成分を混合させた一層形態で一对の電極間に挟持させた型の素子(図8)がある。

【0025】本発明の有機電界発光素子は、これらの素子構成に限るものではなく、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層を複数層設けたりすることができる。また、それぞれの型の素子において、正孔注入輸送層と発光層との間に、正孔注入輸送成分と発光成分の混合層または/および発光層と電子注入輸送層との間に、発光成分と電子注入輸送成分の混合層を設けることもできる。より好ましい有機電界発光素子の構成は、(A)型素子、(B)型素子、(C)型素子、(E)型素子、(F)型素子、(G)型素子または(H)型素子であり、さらに好ましくは、(A)型素子、(B)型素子、(C)型素子、(F)型素子または(H)型素子である。

【0026】本発明の有機電界発光素子としては、例えば、(図1)に示す(A)陽極/正孔注入輸送層/発光層/電子注入輸送層/陰極型素子について説明する。

(図1)において、1は基板、2は陽極、3は正孔注入輸送層、4は発光層、5は電子注入輸送層、6は陰極、7は電源を示す。

【0027】本発明の有機電界発光素子は、基板1に支持されていることが好ましく、基板としては、特に限定するものではないが、透明ないし半透明であることが好ましく、例えば、ガラス板、透明プラスチックシート(例えば、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリスルホン、ポリメチルメタクリレート、ポリプロピレン、ポリエチレンなどのシート)、半透明プラスチック

シート、石英、透明セラミックス、あるいは、これらを組み合わせた複合シートからなるものを挙げることができる。さらに、基板に、例えば、カラーフィルター膜、色変換膜、誘電体反射膜を組み合わせて、発光色をコントロールすることもできる。

【0028】陽極2としては、比較的工作関数の大きい金属、合金または電気導性化合物を電極物質として使用することが好ましい。陽極に使用する電極物質としては、例えば、金、白金、銀、銅、コバルト、ニッケル、パラジウム、バナジウム、タングステン、酸化錫、酸化亜鉛、ITO(インジウム・ティン・オキシド)、ポリチオフェン、ポリピロールなどを挙げることができる。これらの電極物質は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。陽極は、これらの電極物質を、例えば、蒸着法、スパッタリング法等の方法により、基板の上に形成することができる。また、陽極は一層構造であってもよく、あるいは多層構造であってもよい。陽極のシート電気抵抗は、好ましくは、数百 $\Omega/\square$ 以下、より好ましくは、5~50 $\Omega/\square$ 程度に設定する。陽極の厚みは、使用する電極物質の材料にもよるが、一般に、5~1000nm程度、より好ましくは、10~500nm程度に設定する。

【0029】正孔注入輸送層3は、陽極からの正孔(ホール)の注入を容易にする機能、および注入された正孔を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。正孔注入輸送層は、本発明に係る一般式(1)で表される化合物および/または他の正孔注入輸送機能を有する化合物(例えば、フタロシアニン誘導体、トリアリールメタン誘導体、トリアリールアミン誘導体、オキサゾール誘導体、ヒドラゾン誘導体、スチルベン誘導体、ピラゾリン誘導体、ポリシラン誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾール誘導体など)を少なくとも1種用いて形成することができる。尚、正孔注入輸送機能を有する化合物は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0030】本発明において用いる他の正孔注入輸送機能を有する化合物としては、トリアリールアミン誘導体(例えば、4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(4"-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル、4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル、4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メトキシフェニル)アミノ]ビフェニル、4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(1"-ナフチル)アミノ]ビフェニル、3, 3'-ジメチル-4, 4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル、1, 1'-ビス[4'-[N, N-ジ(4"-メチルフェニル)アミノ]フェニル]シクロヘキサン、9, 10-ビス[N-(4'-メチルフェニル)-N-(4"-n-ブチルフェニル)アミノ]フェ



ナントレン、3, 8-ビス(N, N-ジフェニルアミノ)-6-フェニルフェナントリジン、4-メチル-N, N-ビス[4'', 4'''-ビス(N', N'-ジ(4-メチルフェニル)アミノ)ビフェニル-4-イル]アニリン、N, N'-ビス[4-(ジフェニルアミノ)フェニル]-N, N'-ジフェニル-1, 3-ジアミノベンゼン、N, N'-ビス[4-(ジフェニルアミノ)フェニル]-N, N'-ジフェニル-1, 4-ジアミノベンゼン、5, 5''-ビス[4-(ビス[4-メチルフェニル]アミノ)フェニル]-2, 2':5', 2''-ターチオフェン、1, 3, 5-トリス(ジフェニルアミノ)ベンゼン、4, 4', 4''-トリス(N-カルバゾリル)トリフェニルアミン、4, 4', 4''-トリス[N-(3'''-メチルフェニル)-N-フェニルアミノ]トリフェニルアミン、1, 3, 5-トリス[N-(4'-ジフェニルアミノフェニル)フェニルアミノ]ベンゼンなど)、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾール誘導体がより好ましい。本発明において、一般式(1)で表される化合物と他の正孔注入輸送機能を有する化合物を併用する場合、正孔注入輸送層中に占める一般式(1)で表される化合物の割合は、好ましくは、0.1~40重量%程度に調製する。

【0031】発光層4は、正孔および電子の注入機能、それらの輸送機能、正孔と電子の再結合により励起子を生成させる機能を有する化合物を含有する層である。発光層は、一般式(1)で表される化合物および/または他の発光機能を有する蛍光性化合物(例えば、アクリドン誘導体、キナクリドン誘導体、多環芳香族化合物(例えば、ルブレン、アントラセン、テトラセン、ピレン、ペリレン、クリセン、デカシクレン、コロネン、テトラフェニルシクロペンタジエン、ペンタフェニルシクロペンタジエン、9, 10-ジフェニルアントラセン、9, 10-ビス(フェニルエチニル)アントラセン、1, 4-ビス(9'-エチニルアントラセニル)ベンゼン、4, 4'-ビス(9''-エチニルアントラセニル)ビフェニル)、トリアリールアミン誘導体(例えば、正孔注入輸送機能を有する化合物として前述した化合物を挙げることができる)、有機金属錯体(例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(10-ベンゾ[h]キノリノラート)ベリリウム、2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾオキサゾールの亜鉛塩、2-(2'-ヒドロキシフェニル)ベンゾチアゾールの亜鉛塩、4-ヒドロキシアクリジンの亜鉛塩)、スチルベン誘導体(例えば、1, 1, 4, 4-テトラフェニル-1, 3-ブタジエン、4, 4'-ビス(2, 2-ジフェニルビニル)ビフェニル)、クマリン誘導体(例えば、クマリン1、クマリン6、クマリン7、クマリン30、クマリン106、クマリン138、クマリン151、クマリン152、クマリン153、クマリン307、クマ

リン311、クマリン314、クマリン334、クマリン338、クマリン343、クマリン500)、ピラン誘導体(例えば、DCM1、DCM2)、オキサゾン誘導体(例えば、ナイルレッド)、ベンゾチアゾール誘導体、ベンゾオキサゾール誘導体、ベンゾイミダゾール誘導体、ピラジン誘導体、ケイ皮酸エステル誘導体、ポリ-N-ビニルカルバゾールおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリフェニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリビフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリターフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリナフチレンビニレンおよびその誘導体、ポリチエニレンビニレンおよびその誘導体などを少なくとも1種用いて形成することができる。

【0032】本発明の有機電界発光素子においては、発光層に一般式(1)で表される化合物を含有していることが好ましい。一般式(1)で表される化合物と他の発光機能を有する化合物を併用する場合、発光層中に占める一般式(1)で表される化合物の割合は、好ましくは、0.001~99.999重量%程度、より好ましくは、0.01~99.99重量%程度、さらに好ましくは、0.1~99.9重量%程度に調製する。

【0033】本発明において用いる他の発光機能を有する化合物としては、発光性有機金属錯体がより好ましい。例えば、J. Appl. Phys., 65, 3610 (1989)、特開平5-214332号公報に記載のように、発光層をホスト化合物とゲスト化合物(ドーバント)とより構成することもできる。一般式(1)で表される化合物を、ホスト化合物として用いて発光層を形成することができ、さらには、ゲスト化合物として用いて発光層を形成することもできる。一般式(1)で表される化合物を、ゲスト化合物として用いて発光層を形成する場合、ホスト化合物としては、発光性有機金属錯体が好ましい。この場合、発光性有機金属錯体に対して、一般式(1)で表される化合物を、好ましくは、0.001~40重量%程度、より好ましくは、0.01~30重量%程度、特に好ましくは、0.1~10重量%程度使用する。

【0034】一般式(1)で表される化合物と併用する発光性有機金属錯体としては、特に限定するものではないが、発光性有機アルミニウム錯体が好ましく、置換または未置換の8-キノリノラート配位子を有する発光性有機アルミニウム錯体がより好ましい。好ましい発光性有機金属錯体としては、例えば、一般式(a)~一般式(c)で表される発光性有機アルミニウム錯体を挙げることができる。



(式中、Qは置換または未置換の8-キノリノラート配位子を表す)



(式中、Qは置換8-キノリノラート配位子を表し、O

—Lはフェノラート配位子であり、Lはフェニル部分を含む炭素数6～24の炭化水素基を表す)



(式中、Qは置換8-キノリノラート配位子を表す)

【0035】発光性有機金属錯体の具体例としては、例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(3, 4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4, 5-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、トリス(4, 6-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(フェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(4-メチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3-フェニルフェノラート)アルミニウム、【0036】ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2, 3-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2, 6-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3, 4-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3, 5-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(3, 5-ジ-tert-ブチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2, 6-ジフェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2, 4, 6-トリフェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2, 4, 6-トリメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2, 4, 5, 6-テトラメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(1-ナフトラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)(2-ナフトラート)アルミニウム、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)(2-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)(3-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)(4-フェニルフェノラート)アルミニウム、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)(3, 5-ジメチルフェノラート)アルミニウム、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)(3, 5-ジ-tert-

ブチルフェノラート)アルミニウム、

【0037】ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソ-ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソ-ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソ-ビス(2-メチル-4-エチル-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソ-ビス(2-メチル-4-メトキシ-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソ-ビス(2-メチル-5-シアノ-8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソ-ビス(2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート)アルミニウムなどを挙げることができる。勿論、発光性有機金属錯体は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0038】電子注入輸送層5は、陰極からの電子の注入を容易にする機能、そして注入された電子を輸送する機能を有する化合物を含有する層である。電子注入輸送層は、一般式(1)で表される化合物および/または他の電子注入輸送機能を有する化合物(例えば、有機金属錯体〔例えば、トリス(8-キノリノラート)アルミニウム、ビス(10-ベンゾ[h]キノリノラート)ベリリウム〕、オキサジアゾール誘導体、トリアゾール誘導体、トリアジン誘導体、ペリレン誘導体、キノリン誘導体、キノキサリン誘導体、ジフェニルキノリン誘導体、ニトロ置換フルオレノン誘導体、チオピランジオキサイド誘導体など)を少なくとも1種用いて形成することができる。本発明の有機電界発光素子においては、電子注入輸送層に、一般式(1)で表される化合物を含有していることが好ましい。一般式(1)で表される化合物と他の電子注入輸送機能を有する化合物を併用する場合、電子注入輸送層中に占める本発明に係る一般式(1)で表される化合物の割合は、好ましくは、0.1重量%以上、より好ましくは、0.1～40重量%程度、さらに好ましくは、0.2～30重量%程度、特に好ましくは、0.5～20重量%程度に調製する。本発明においては、一般式(1)で表される化合物と有機金属錯体〔例えば、前記一般式(a)～一般式(c)で表される化合物〕を併用して、電子注入輸送層を形成することは好ましい。

【0039】陰極6としては、比較的仕事関数の小さい金属、合金または電気導性化合物を電極物質として使用することが好ましい。陰極に使用する電極物質としては、例えば、リチウム、リチウム-インジウム合金、ナトリウム、ナトリウム-カリウム合金、カルシウム、マ

グネシウム、マグネシウム-銀合金、マグネシウム-インジウム合金、インジウム、ルテニウム、チタニウム、マンガン、イットリウム、アルミニウム、アルミニウム-リチウム合金、アルミニウム-カルシウム合金、アルミニウム-マグネシウム合金、グラファイト薄膜等を挙げることができる。これらの電極物質は、単独で使用するもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0040】陰極は、これらの電極物質を、例えば、蒸着法、スパッタリング法、イオン化蒸着法、イオンプレーティング法、クラスターイオンビーム法等の方法により、電子注入輸送層の上に形成することができる。また、陰極は一層構造であってもよく、あるいは多層構造であってもよい。尚、陰極のシート電気抵抗は、数百 $\Omega$ /□以下に設定するのが好ましい。陰極の厚みは、使用する電極物質の材料にもよるが、一般に、5~1000 nm程度、より好ましくは、10~500 nm程度に設定する。尚、有機電界発光素子の発光を効率よく取り出すために、陽極または陰極の少なくとも一方の電極が、透明ないし半透明であることが好ましく、一般に、発光光の透過率が70%以上となるように陽極の材料、厚みを設定することがより好ましい。

【0041】また、本発明の有機電界発光素子においては、その少なくとも一層中に、一重項酸素クエンチャーが含有されていてもよい。一重項酸素クエンチャーとしては、特に限定するものではなく、例えば、ルブレン、ニッケル錯体、ジフェニルイソベンゾフランなどが挙げられ、特に好ましくは、ルブレンである。一重項酸素クエンチャーが含有されている層としては、特に限定するものではないが、好ましくは、発光層または正孔注入輸送層であり、より好ましくは、正孔注入輸送層である。尚、例えば、正孔注入輸送層に一重項酸素クエンチャーを含有させる場合、正孔注入輸送層中に均一に含有させてもよく、正孔注入輸送層と隣接する層（例えば、発光層、発光機能を有する電子注入輸送層）の近傍に含有させてもよい。一重項酸素クエンチャーの含有量としては、含有される層（例えば、正孔注入輸送層）を構成する全体量の0.01~50重量%、好ましくは、0.05~30重量%、より好ましくは、0.1~20重量%である。

【0042】正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の形成方法に関しては、特に限定するものではなく、例えば、真空蒸着法、イオン化蒸着法、溶液塗布法（例えば、スピンコート法、キャスト法、ディップコート法、バーコート法、ロールコート法、ラングミュア・プロゼット法など）により薄膜を形成することにより作製することができる。真空蒸着法により、各層を形成する場合、真空蒸着の条件は、特に限定するものではないが、 $10^{-5}$  Torr 程度以下の真空下で、50~400℃程度のボート温度（蒸着源温度）、-50~300℃程度の基板温度で、0.005~50 nm/sec 程度の蒸着速

度で実施することが好ましい。この場合、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層は、真空下で、連続して形成することにより、諸特性に一層優れた有機電界発光素子を製造することができる。真空蒸着法により、正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層等の各層を、複数の化合物を用いて形成する場合、化合物を入れた各ボートを個別に温度制御して、共蒸着することが好ましい。

【0043】溶液塗布法により、各層を形成する場合、各層を形成する成分あるいはその成分とバインダー樹脂等を、溶媒に溶解、または分散させて塗布液とする。正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の各層に使用するバインダー樹脂としては、例えば、ポリ-N-ビニルカルバゾール、ポリアリレート、ポリスチレン、ポリエステル、ポリシロキサン、ポリメチルアクリレート、ポリメチルメタアクリレート、ポリエーテル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリパラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレンオキサイド、ポリエーテルスルホン、ポリアニリンおよびその誘導体、ポリチオフェンおよびその誘導体、ポリフェニレンビニレンおよびその誘導体、ポリフルオレンおよびその誘導体、ポリチエニレンビニレンおよびその誘導体等の高分子化合物が挙げられる。バインダー樹脂は、単独で使用するもよく、あるいは複数併用してもよい。

【0044】溶液塗布法により、各層を形成する場合、各層を形成する成分あるいはその成分とバインダー樹脂等を、適当な有機溶媒（例えば、ヘキサン、オクタン、デカン、トルエン、キシレン、エチルベンゼン、1-メチルナフタレン等の炭化水素系溶媒、例えば、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン系溶媒、例えば、ジクロロメタン、クロロホルム、テトラクロロメタン、ジクロロエタン、トリクロロエタン、テトラクロロエタン、クロロベンゼン、ジクロロベンゼン、クロロトルエン等のハロゲン化炭化水素系溶媒、例えば、酢酸エチル、酢酸ブチル、酢酸アミル等のエステル系溶媒、例えば、メタノール、プロパノール、ブタノール、ペンタノール、ヘキサノール、シクロヘキサノール、メチルセロソルブ、エチルセロソルブ、エチレングリコール等のアルコール系溶媒、例えば、ジブチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサン、アニソール等のエーテル系溶媒、例えば、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジメチルアセトアミド、1-メチル-2-ピロリドン、1,3-ジメチル-2-イミダゾリジノン、ジメチルスルフォキサイド等の極性溶媒）および/または水に溶解、または分散させて塗布液とし、各種の塗布法により、薄膜を形成することができる。

【0045】尚、分散する方法としては、特に限定するものではないが、例えば、ボールミル、サンドミル、ペ

イントシェーカー、アトライター、ホモジナイザー等を用いて微粒子状に分散することができる。塗布液の濃度に関しては、特に限定するものではなく、実施する塗布法により、所望の厚みを作製するに適した濃度範囲に設定することができ、一般には、0.1～50重量%程度、好ましくは、1～30重量%程度の溶液濃度である。尚、バインダー樹脂を使用する場合、その使用量に関しては、特に限定するものではないが、一般には、各層を形成する成分に対して（一層型の素子を形成する場合には、各成分の総量に対して）、5～99.9重量%程度、好ましくは、10～99重量%程度、より好ましくは、15～90重量%程度に設定する。

【0046】正孔注入輸送層、発光層、電子注入輸送層の膜厚に関しては、特に限定するものではないが、一般に、5nm～5μm程度に設定することが好ましい。尚、作製した素子に対し、酸素や水分等との接触を防止する目的で、保護層（封止層）を設けたり、また素子を、例えば、パラフィン、流動パラフィン、シリコンオイル、フルオロカーボン油、ゼオライト含有フルオロカーボン油などの不活性物質中に封入して保護することができる。保護層に使用する材料としては、例えば、有機高分子材料（例えば、フッ素化樹脂、エポキシ樹脂、シリコン樹脂、エポキシシリコン樹脂、ポリスチレン、ポリエステル、ポリカーボネート、ポリアミド、ポリイミド、ポリアミドイミド、ポリバラキシレン、ポリエチレン、ポリフェニレンオキサイド）、無機材料（例えば、ダイヤモンド薄膜、アモルファスシリカ、電気絶縁性ガラス、金属酸化物、金属窒化物、金属炭素化物、金属硫化物）、さらには光硬化性樹脂などを挙げることができ、保護層に使用する材料は、単独で使用してもよく、あるいは複数併用してもよい。保護層は、一層構造であってもよく、また多層構造であってもよい。

【0047】また、電極に保護膜として、例えば、金属酸化膜（例えば、酸化アルミニウム膜）、金属フッ化膜を設けることもできる。また、例えば、陽極の表面に、例えば、有機リン化合物、ポリシラン、芳香族アミン誘導体、フタロシアニン誘導体から成る界面層（中間層）を設けることもできる。さらに、電極、例えば、陽極はその表面を、例えば、酸、アンモニア/過酸化水素、あるいはプラズマで処理して使用することもできる。

【0048】本発明の有機電界発光素子は、一般に、直流駆動型の素子として使用されるが、パルス駆動型または交流駆動型の素子としても使用することができる。尚、印加電圧は、一般に、2～30V程度である。本発明の有機電界発光素子は、例えば、パネル型光源、各種の発光素子、各種の表示素子、各種の標識、各種のセンサーなどに使用することができる。

【0049】

【実施例】以下、実施例により本発明をさらに詳細に説明するが、勿論、本発明はこれらに限定されるものではない。

ない。

#### 実施例1

厚さ200nmのITO透明電極（陽極）を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torrに減圧した。まず、ITO透明電極上に、4,4'-ビス〔N-フェニル-N-(1"-ナフチル)アミノ〕ビフェニルを、蒸着速度0.2nm/secで75nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、トリス（8-キノリノラート）アルミニウムと第1表に示す化合物（1-1）（以下、同じ）を、異なる蒸着源から、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに共蒸着（重量比100:0.5）し、発光層とした。次に、トリス（8-キノリノラート）アルミニウムを、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着（重量比10:1）して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したところ、58mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れた。輝度2240cd/m<sup>2</sup>の赤橙色の発光が確認された。

#### 【0050】実施例2～14

実施例1において、発光層の形成に際して、化合物（1-1）を使用する代わりに、化合物（1-2～1-14）を使用した以外は、実施例1に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。それぞれの素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したところ、赤橙色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第2表（表4）に示した。

#### 【0051】比較例1

実施例1において、発光層の形成に際して、化合物（1-1）を使用せずに、トリス（8-キノリノラート）アルミニウムだけを用いて、50nmの厚さに蒸着し、発光層とした以外は、実施例1に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。この素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したところ、緑色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第2表に示した。

#### 【0052】比較例2

実施例1において、発光層の形成に際して、化合物（1-1）を使用する代わりに、1,3,5,7,8-ペンタメチル-4,4'-ジフルオロ-4-ボラ-3a,4a-ジアザ-s-インダセンを使用した以外は、実施例1に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。この素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したところ、緑色の発光が確認された。さらにその特性を調べ、結果を第2表に示した。

【0053】

【表4】

第2表

有機電界 発光素子	輝度 (cd/m <sup>2</sup> )	電流密度 (mA/cm <sup>2</sup> )
実施例 2	2260	60
実施例 3	2240	54
実施例 4	2230	61
実施例 5	2260	56
実施例 6	2320	57
実施例 7	2250	55
実施例 8	2300	56
実施例 9	2230	59
実施例 10	2290	55
実施例 11	2350	55
実施例 12	2300	56
実施例 13	2260	60
実施例 14	2320	61
比較例 1	1170	82
比較例 2	1550	60

## 【0054】実施例15

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torr に減圧した。まず、ITO透明電極上に、4,4'-ビス〔N-フェニル-N-(3'-メチルフェニル)アミノ〕ビフェニルを、蒸着速度0.2nm/secで75nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムと化合物(1-23)を、異なる蒸着源から、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに共蒸着(重量比100:1.0)し、発光層とした。次に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したところ、58mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れた。輝度1950cd/m<sup>2</sup>の赤橙色の発光が確認された。

## 【0055】実施例16

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さ

らにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torr に減圧した。まず、ITO透明電極に、4,4'-ビス〔N-フェニル-N-(3'-メチルフェニル)アミノ〕ビフェニルを、蒸着速度0.2nm/secで75nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソ-ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウムと化合物(1-27)を、異なる蒸着源から、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに共蒸着(重量比100:2.0)し、発光層とした。次に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度0.2nm/secで50nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度0.2nm/secで200nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、12Vの直流電圧を印加したところ、60mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れた。輝度2010cd/m<sup>2</sup>の赤橙色の発光が確認された。

## 【0056】実施例17

厚さ200nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torr に減圧した。

まず、ITO透明電極上に、4, 4'-ビス〔N-フェニル-N-(3'-メチルフェニル)アミノ〕ビフェニルを、蒸着速度0.2 nm/sec で75 nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソ-ビス(2, 4-ジメチル-8-キノリノラート)アルミニウムと化合物(1-16)を、異なる蒸着源から、蒸着速度0.2 nm/sec で50 nmの厚さに共蒸着(重量比100:4.0)し、発光層とした。次に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度0.2 nm/sec で50 nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度0.2 nm/sec で200 nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、12 Vの直流電圧を印加したところ、61 mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れた。輝度1970 cd/m<sup>2</sup>の赤橙色の発光が確認された。

#### 【0057】実施例18

厚さ200 nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torrに減圧した。まず、ITO透明電極上に、4, 4'-ビス〔N-フェニル-N-(3'-メチルフェニル)アミノ〕ビフェニルを、蒸着速度0.2 nm/sec で75 nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムと化合物(1-29)を、異なる蒸着源から、蒸着速度0.2 nm/sec で50 nmの厚さに共蒸着(重量比100:1.0)し、電子注入輸送層を兼ねた発光層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度0.2 nm/sec で200 nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、12 Vの直流電圧を印加したところ、58 mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れた。輝度1950 cd/m<sup>2</sup>の赤橙色の発光が確認された。

#### 【0058】実施例19

厚さ200 nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torrに減圧した。まず、ITO透明電極上に、4, 4'-ビス〔N-フェニル-N-(3'-メチルフェニル)アミノ〕ビフェニルを、蒸着速度0.2 nm/sec で75 nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、1,

1, 4, 4'-テトラフェニル-1, 3-ブタジエンを、蒸着速度0.2 nm/sec で50 nmの厚さに蒸着し、発光層とした。次いで、その上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムと化合物(1-1)を、異なる蒸着源から、蒸着速度0.2 nm/sec で50 nmの厚さに共蒸着(重量比100:4.0)し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2 nm/sec で200 nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、14 Vの直流電圧を印加したところ、52 mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れた。輝度2270 cd/m<sup>2</sup>の青色の発光が確認された。

#### 【0059】実施例20

厚さ200 nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torrに減圧した。まず、ITO透明電極上に、4, 4'-ビス〔N-フェニル-N-(3'-メチルフェニル)アミノ〕ビフェニルを、蒸着速度0.2 nm/sec で75 nmの厚さに蒸着し、正孔注入輸送層とした。次いで、その上に、化合物(1-14)を、蒸着速度0.2 nm/sec で50 nmの厚さに蒸着し、発光層とした。次いで、その上に、1, 3-ビス〔5'-(p-tert-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール-2'-イル〕ベンゼンを、蒸着速度0.2 nm/sec で50 nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度0.2 nm/sec で200 nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、14 Vの直流電圧を印加したところ、49 mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れた。輝度1990 cd/m<sup>2</sup>の赤橙色の発光が確認された。

#### 【0060】実施例21

厚さ200 nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した後、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torrに減圧した。まず、ITO透明電極上に、化合物(1-10)を、蒸着速度0.2 nm/sec で55 nmの厚さに蒸着し、発光層とした。次いで、その上に、1, 3-ビス〔5'-(p-tert-ブチルフェニル)-1, 3, 4-オキサジアゾール-2'-イル〕ベンゼンを、蒸着速度0.2 nm/sec で75 nmの厚さに蒸着し、電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度



0.2 nm/sec で200 nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、15 Vの直流電圧を印加したところ、68 mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れた。輝度1150 cd/m<sup>2</sup>の赤橙色の発光が確認された。

#### 【0061】実施例22

厚さ200 nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した。次に、ITO透明電極上に、ポリ-N-ビニルカルバゾール(重量平均分子量150000)、1,1,4,4-テトラフェニル-1,3-ブタジエン(青色の発光成分)、クマリン6["3-(2'-ベンゾチアゾリル)-7-ジエチルアミノクマリン"(緑色の発光成分)]、および化合物(1-5)を、それぞれ重量比100:5:3:2の割合で含有する3重量%ジクロロエタン溶液を用いて、ディップコート法により、400 nmの発光層を形成した。次に、この発光層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torrに減圧した。さらに、発光層の上に、3-(4'-tert-ブチルフェニル)-4-フェニル-5-(4"-ビフェニル)-1,2,4-トリアゾールを、蒸着速度0.2 nm/sec で20 nmの厚さに蒸着した後、さらにその上に、トリス(8-キノリノラート)アルミニウムを、蒸着速度0.2 nm/sec で30 nmの厚さに蒸着し電子注入輸送層とした。さらにその上に、マグネシウムと銀を蒸着速度0.2 nm/sec で200 nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、12 Vの直流電圧を印加したところ、74 mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れた。輝度1280 cd/m<sup>2</sup>の白色の発光が確認された。

#### 【0062】実施例23

厚さ200 nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した。次に、ITO透明電極上に、ポリ-N-ビニルカルバゾール(重量平均分子量150000)、1,3-ビス[5'-(p-tert-ブチルフェニル)-1,3,4-オキサジアゾール-2'-イル]ベンゼンおよび化合物(1-35)を、それぞれ重量比100:30:3の割合で含有する3重量%ジクロロエタン溶液を用いて、ディップコート法により、300 nmの発光層を形成した。次に、この発光層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torrに減圧した。さらに、発

光層の上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2 nm/sec で200 nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、15 Vの直流電圧を印加したところ、76 mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れた。輝度1360 cd/m<sup>2</sup>の赤橙色の発光が確認された。

#### 【0063】比較例3

実施例23において、発光層の形成に際して、化合物(1-35)の代わりに、1,1,4,4-テトラフェニル-1,3-ブタジエンを使用した以外は、実施例23に記載の方法により有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界素子に、乾燥雰囲気下、15 Vの直流電圧を印加したところ、86 mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れた。輝度680 cd/m<sup>2</sup>の青色の発光が確認された。

#### 【0064】実施例24

厚さ200 nmのITO透明電極(陽極)を有するガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した。次に、ITO透明電極上に、ポリカーボネート(重量平均分子量50000)、4,4'-ビス[N-フェニル-N-(3"-メチルフェニル)アミノ]ビフェニル、ビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム-μ-オキソビス(2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウムおよび化合物(1-7)を、それぞれ重量比100:40:60:1の割合で含有する3重量%ジクロロエタン溶液を用いて、ディップコート法により、300 nmの発光層を形成した。次に、この発光層を有するガラス基板を、蒸着装置の基板ホルダーに固定した後、蒸着槽を $3 \times 10^{-6}$  Torrに減圧した。さらに、発光層の上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2 nm/sec で200 nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とし、有機電界発光素子を作製した。作製した有機電界発光素子に、乾燥雰囲気下、15 Vの直流電圧を印加したところ、66 mA/cm<sup>2</sup>の電流が流れた。輝度1070 cd/m<sup>2</sup>の赤橙色の発光が確認された。

#### 【0065】実施例25

ガラス基板を、中性洗剤、アセトン、エタノールを用いて超音波洗浄した。その基板を窒素ガスを用いて乾燥し、さらにUV/オゾン洗浄した。次に、ガラス基板上に、化合物(1-1)を、蒸着速度0.2 nm/sec で100 nmの厚さに蒸着した。その上に、マグネシウムと銀を、蒸着速度0.2 nm/sec で200 nmの厚さに共蒸着(重量比10:1)して陰極とした。尚、蒸着は、蒸着槽の減圧状態を保ったまま実施した。その後、陰極上にスコッチテープを張り付けた後、スコッチテープを剥離したところ、陰極と共に、化合物(1-1)の薄膜もガラス基板から剥離し、陰極との密着力は良好であることが判明した。

#### 【0066】比較例4

実施例25において、化合物(1-1)の代わりに、1, 3, 5, 7, 8-ペンタメチル-4, 4-ジフルオロ-4-ボラ-3a, 4a-ジアザ-s-インダセンを使用した以外は、実施例25に記載の方法により陰極を蒸着した薄膜を作製した。その後、陰極上にスコッチテープを張り付けた後、スコッチテープを剥離したところ、陰極と1, 3, 5, 7, 8-ペンタメチル-4, 4-ジフルオロ-4-ボラ-3a, 4a-ジアザ-s-インダセンの薄膜の間で剥離し、陰極との密着力は不良であることが判明した。

【0067】

【発明の効果】本発明により、発光輝度が優れた有機電界発光素子を提供することが可能になった。

【図面の簡単な説明】

【図1】有機電界発光素子の1例(A)の概略構造図である。

【図2】有機電界発光素子の1例(B)の概略構造図である。

【図3】有機電界発光素子の1例(C)の概略構造図である。

【図4】有機電界発光素子の1例(D)の概略構造図である。

ある。

【図5】有機電界発光素子の1例(E)の概略構造図である。

【図6】有機電界発光素子の1例(F)の概略構造図である。

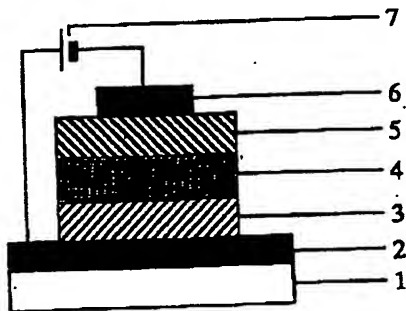
【図7】有機電界発光素子の1例(G)の概略構造図である。

【図8】有機電界発光素子の1例(H)の概略構造図である。

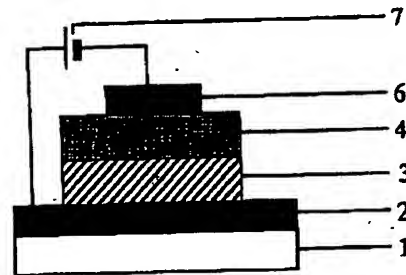
【符号の説明】

- 1: 基板
- 2: 陽極
- 3: 正孔注入輸送層
- 3a: 正孔注入輸送成分
- 4: 発光層
- 4a: 発光成分
- 5: 電子注入輸送層
- 5": 電子注入輸送層
- 5a: 電子注入輸送成分
- 6: 陰極
- 7: 電源

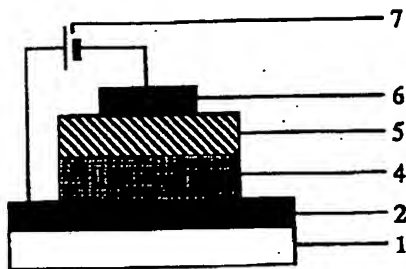
【図1】



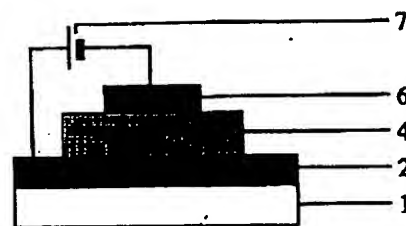
【図2】



【図3】

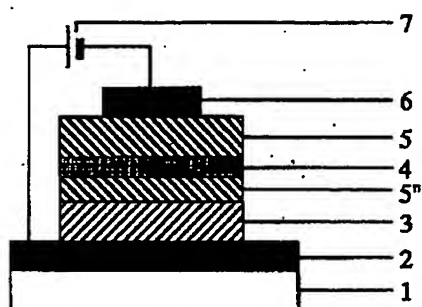


【図4】

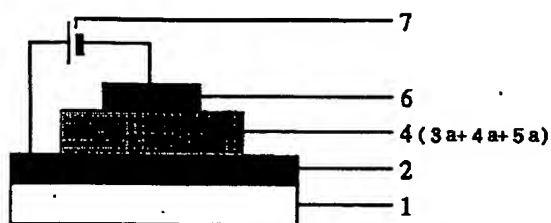




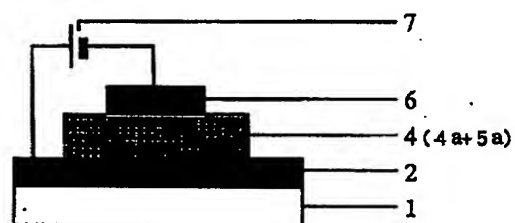
【図5】



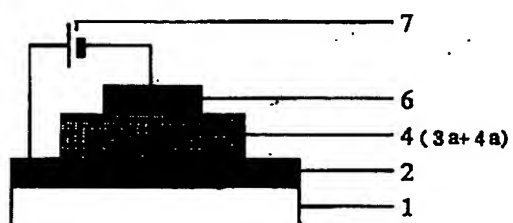
【図6】



【図8】



【図7】



フロントページの続き

(72)発明者 塚原 宇  
神奈川県横浜市栄区笠間町1190番地 三井  
東圧化学株式会社内

(72)発明者 詫摩 啓輔  
神奈川県横浜市栄区笠間町1190番地 三井  
東圧化学株式会社内

(72)発明者 中塚 正勝  
神奈川県横浜市栄区笠間町1190番地 三井  
東圧化学株式会社内

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**